

# Thèse

présentée devant  
l'Université Claude Bernard LYON 1

pour l'obtention du  
**DIPLOME de DOCTORAT**  
(arrêté du 7 août 2006)

par

*Charbel KOUMEIR*

Etude de la pulvérisation ionique de surface  
d'un cristal de Ge sous impact d'ions lourds  
rapides en condition de canalisation

soutenue le 16 décembre 2008  
devant la Commission d'Examen

JURY : M. Dauvergne Denis, Directeur de thèse  
M. Gervais Benoit  
Mme Li Chen, Présidente  
M. Della Negra Serge, Rapporteur  
M. L'Hoir Alain, Rapporteur





## Remerciements

Je remercie tout d'abord chaleureusement les membres de mon jury : Li Chen, Benoît Gervais pour l'intérêt qu'ils ont porté à ma thèse, ainsi que Alain L'Hoir et Serge Della Negra, pour avoir accepté d'en être les rapporteurs. Leur relecture attentive du manuscrit, leurs commentaires et suggestions ont permis d'en améliorer la qualité.

Je remercie aussi chaleureusement nos collaborateurs pour leur apport sur les différentes expériences réalisées lors de la thèse. Je remercie Alain L'Hoir pour sa contribution sur l'analyse des données, et je remercie aussi Didier Schmaus et Camille Cohen pour les différentes expériences de dosage nucléaire qu'ils ont réalisées, en m'accueillant au Van de Graff de Jussieu à Paris pour une journée. Je remercie Hermann Rothard pour les différentes discussions qu'on a eues sur la pulvérisation.

Je remercie sincèrement Denis Dauvergne pour ses qualités en tant de directeur de thèse. Tout d'abord, je te remercie pour ta gentillesse et ta patience infinies. Je te remercie également pour ta disponibilité, la liberté et la confiance que tu m'as accordées sur les différents sujets. Je te remercie pour ton souci continu de me garantir une ambiance qui m'aide à travailler. L'effort que tu as fait pour avancer mon travail et pour corriger ce manuscrit, plusieurs fois sur tes vacances, était indispensable. Denis, sans toi ce travail n'aurait jamais pu voir la lumière.

Je remercie Jean Claude Poizat pour son apport original sur le fond de ce travail sans oublier aussi sa volonté et sa patience de corriger et de relire plusieurs fois tout le manuscrit pour lui donner une touche parfaite. Je le remercie également pour les différentes discussions profondes qu'on a eues. Lorsqu'on parle avec Jean Claude on touche à la fois la richesse des idées, la simplicité et le plaisir de s'approfondir dans la physique. Lorsqu'on parle avec Jean Claude on rencontre un homme modeste, plein d'énergie et de motivation, qui donne sans limite et tout ça dans une ambiance de bonne humeur. Je te remercie pour ta façon de m'expliquer et pour ta volonté de bien vouloir me comprendre quand je n'arrive pas à exprimer mon idée.

Mal chanceux les jours qui échappent sans une discussion avec Cédric. Si j'ai un problème dans ma vie professionnelle ou ma vie privée, si j'ai des points à clarifier dans tous les domaines de la vie, je trouve la solution chez Cédric. Je te remercie Cédric pour les heures et les heures que tu as consacrées à m'entendre, à me conseiller et à corriger des choses et des choses dans ma personnalité. Je te remercie pour ton apport sur le fond de mon travail à travers les différentes discussions physiques qu'on a eues. Je te remercie pour ton style extrêmement pédagogique. Je n'oublierai jamais ton infinie aide sur les logiciels d'analyse de données et pour ton immense effort pour la mise en forme de la thèse.

Je remercie Michel Chevallier, le responsable du groupe CAS, pour ses interventions centrales pour que tout soit sur la bonne route. Je te remercie pour tes aides cruciales en informatique concernant la programmation pour l'analyse des données, et sur l'aspect expérimental pour tout ce qui concerne la chaîne électronique.

Je remercie Mireille Fallavier pour la réalisation des expériences de caractérisation en surface de notre cristal de germanium avec les agrégats au Van de Graff de Lyon, ainsi que pour sa participation enrichissante dans les réunions d'analyse des données.

Je n'oublie pas de remercier Etienne Testa qui m'a toujours encouragé, je le remercie également pour ses différentes aides et ses différents conseils pendant le stage et la thèse.

Vraiment j'ai eu de la chance de travailler avec le groupe CAS. Dans le fond, on peut se poser la question suivante : est ce qu'on rencontre toujours dans la vie un groupe de travail qui nous encadre, nous soutient et nous fait grandir aux différents plans professionnel et moral ? Je pense que c'est plutôt rare. Je vous souhaite un avenir plein de réussite, de joie et j'en profite, dans ce même cadre, pour souhaiter la même chose aux thésards actuels du groupe.

Je remercie les personnels de différents services de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon, particulièrement Sylvie Flores pour sa gentillesse et sa disponibilité.

Je remercie les doctorants de l'Institut pour le temps qu'on a passé ensemble, les repas à midi, les pauses café, les goûters, les sorties ... Ces rencontres étaient des jolis moments d'amitié, de partage, de culture...qui font beaucoup plaisir au sein d'un cadre de travail sérieux et d'une vie chargée.

Je n'oublie pas d'évoquer Pierre Solène, Damien Mercier et Jérôme Roccaz, mes trois collègues de bureau. J'ai partagé avec chacun d'eux des moments inoubliables, tant au niveau sérieux de partage d'informations, de souvenirs, de conseils, qu'au niveau des défoulements les plus rigoureux. Je les remercie pour cette ambiance de convivialité.

Un peu plus loin du cadre du laboratoire, je remercie mes amis Nayla et Adnan qui m'ont soutenu jusqu'au dernier moment. Ce long chemin qu'on a commencé, j'espère qu'on le continuera ensemble.

Avant de terminer, je remercie ma famille de son encouragement et de ses prières. Je pense à tous leurs sacrifices pour que je puisse construire mon avenir. Je pense également à ma sœur Diala qui m'a aidée à surmonter tant de difficultés.

Je ne peux évidemment finir sans remercier Angéline dont le soutien a été sans faille.

Enfin, merci à tous ceux qui s'aventureront au-delà de cette page, et bonne lecture.

# Sommaire

<b>Remerciements .....</b>	<b>3</b>
<b>Sommaire .....</b>	<b>5</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>7</b>
<b>Chapitre 1 : Généralités sur la pulvérisation ionique .....</b>	<b>9</b>
A - Le ralentissement des ions lourds rapides et les mécanismes de changement de charge .....	9
I. La charge de l'ion.....	9
1) Les processus d'échange de charge.....	9
2) L'équilibre de charge .....	10
II. Le ralentissement.....	10
1) Le pouvoir d'arrêt électronique de la cible .....	11
2) Les collisions à grande distance .....	16
3) Le pouvoir d'arrêt nucléaire de la cible .....	16
4) Le pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire du germanium sur l'ion incident plomb.....	17
B - Les conséquences du dépôt d'énergie électronique dans un solide .....	18
I. Les modèles théoriques .....	18
1) Modèle de la pointe thermique.....	18
2) Modèle de l'explosion coulombienne .....	20
II. La pulvérisation électronique .....	20
C - L'apport original de la canalisation sur la pulvérisation électronique .....	21
I. Les conditions de la canalisation.....	21
II. Les ions bien canalisés et les ions de forte perte d'énergie.....	22
1) L'échange de charge.....	23
2) La perte d'énergie.....	24
III. L'intérêt de la canalisation .....	27
<b>Chapitre 2 : Dispositif expérimental.....</b>	<b>29</b>
A - Le Faisceau.....	29
I. Production .....	29
1) Le GANIL .....	29
2) La source et les phases d'accélération.....	30
II. Caractéristique du faisceau extrait .....	31
B - Le cristal et le dispositif de détection.....	31
I. La cible.....	33

1) Choix de la cible.....	33
2) Elaboration du cristal et choix de l'axe d'alignement.....	34
3) Caractérisation de la cible .....	35
4) Orientation du cristal .....	43
II. Le système de détection des ions secondaires.....	44
1) Le signal Start : détection des électrons secondaires .....	44
2) La grille .....	46
3) Le temps de vol des ions .....	47
4) LAG.....	48
III. Spectromètre à Perte d'Energie du GANIL (SPEG).....	52
1) Le spectromètre à perte d'énergie .....	53
2) La chambre à dérive .....	53
3) Le détecteur plastique.....	54
4) Etalonnage en Impulsion de SPEG .....	54
<b>Chapitre 3 : Résultats de l'expérience.....</b>	<b>59</b>
A - La distribution d'états de charge pour les trois systèmes.....	59
B - Echange de charge en couche amorphe.....	61
C - Bruit de fond de la grille .....	62
D - La perte d'énergie des ions transmis pour les trois systèmes.....	63
I. La perte d'énergie moyenne en fonction de l'état de charge .....	63
II. La perte d'énergie normalisée .....	65
1) Ions $Pb^{72+}$ incidents à 28,6 MeV/u .....	66
2) Ions $Pb^{28+}$ incidents à 6,5MeV/u .....	67
E - Emission ionique .....	68
I. Orientation quelconque .....	68
1) Spectre temps de vol du LAG .....	68
2) La distribution de la multiplicité et sa valeur moyenne .....	70
3) Rendements .....	71
4) La fragmentation des principales espèces émises .....	74
5) Comparaison de la distribution de multiplicité à une distribution de Poisson .....	75
6) Ions $Pb^{56+}$ et $Pb^{28+}$ incidents à 29 MeV/u et à 6,5 MeV/u respectivement.....	77
7) Comparaison des trois systèmes.....	78
II. Alignement axial .....	82
1) Mise en évidence d'un effet lié à la canalisation .....	82
2) Etude de l'émission ionique en fonction de la perte d'énergie .....	102
<b>Conclusion.....</b>	<b>123</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>126</b>

## Introduction

Les ions lourds rapides pénétrant dans un solide interagissent principalement avec les électrons du milieu. Dans de nombreux solides l'ionisation des atomes de la cible voisins des trajectoires des ions aboutit à la formation d'une zone de défauts cylindrique dans le volume, appelée la trace de l'ion, et à la pulvérisation en surface, qui consiste en l'émission d'atomes ou de molécules, chargés ou neutres. On parlera donc ici de pulvérisation électronique, dans le sens où les atomes, molécules ou ions émis de la surface résultent principalement du transfert d'énergie aux électrons, et très peu des collisions élastiques avec les atomes.

L'étude de la formation des traces et de la pulvérisation n'est simple ni sur le plan théorique ni sur le plan expérimental, car les temps caractéristiques associés à la relaxation du système électronique et atomique sont très courts, et les perturbations sont très localisées. Cependant, à la surface, les émissions d'électrons, d'ions, d'atomes neutres... apportent des informations sur le mécanisme de dépôt d'énergie, de transport de celle-ci après le passage de l'ion et de mise en mouvement des atomes de la cible (création de défauts).

Pour essayer d'apporter notre petit caillou à ce domaine qui est très vaste, nous avons fait une expérience de pulvérisation électronique au GANIL. Nous nous sommes intéressés dans ce travail à l'émission d'ions secondaires émis à la surface d'un cristal de germanium sous l'impact d'ions rapides en condition de canalisation.

Le principe de l'expérience était d'avoir une large distribution du taux de perte d'énergie avec des ions lourds à la surface du cristal de germanium pour chercher des effets différentiels sur l'émission ionique. La canalisation procure cette possibilité en raison de la distribution très grande des densités électroniques rencontrées par les ions suivant leur paramètre d'impact par rapport aux rangées d'atomes. En particulier, les ions incidents qui pénètrent très près des rangées d'atomes provoquent un dépôt d'énergie qui peut localement dépasser 100 keV/nm, ce qui est très supérieur au seuil d'endommagement trouvé pour le germanium avec des agrégats accélérés. Ceci devait donc permettre d'étudier en détail la pulvérisation ionique en surface. Plus particulièrement, nous nous sommes posé la question de l'explosion coulombienne d'une rangée d'atomes soumise à un dépôt d'énergie élevé, qui se traduit en particulier par une ionisation importante des atomes cible.

Nous avons varié le taux de perte d'énergie en variant la charge et la vitesse des ions plomb incidents. Pour ce faire nous avons utilisé trois faisceaux de plomb : à l'énergie 28,6 MeV/u avec l'état de charge incident  $72+$ , à 29 MeV/u avec l'état de charge  $56+$  et à 6,5 MeV/u avec l'état de charge  $28+$ .

Dans le premier chapitre, nous présentons l'échange de charge et le ralentissement des ions lourds rapides dans un solide, puis nous parlons de la pulvérisation électronique du point de vue théorique et expérimental, enfin nous présentons l'intérêt de la canalisation des ions lourds suivant une direction d'axe donnée dans un cristal pour introduire notre expérience de pulvérisation.

Dans le deuxième chapitre nous détaillons le dispositif utilisé dans notre expérience. Tout d'abord nous parlons du faisceau utilisé et de ses caractéristiques. Ensuite nous parlons du cristal de germanium utilisé, de son élaboration, de sa caractérisation et de son orientation avec le faisceau. Enfin nous décrivons le système de détection des ions secondaires et le spectromètre SPEG du GANIL.

Dans le dernier chapitre, nous présentons les différents résultats obtenus lorsque le cristal est traversé par les ions incidents suivant une direction quelconque puis suivant la direction d'un axe  $\langle 110 \rangle$ . Nous présentons, analysons et discutons les résultats en terme de multiplicité d'ions détectés, et de rendements des différentes espèces émises.

Enfin nous terminons par une conclusion qui rassemble les différents résultats obtenus.



# Chapitre 1 : Généralités sur la pulvérisation ionique

Ce premier chapitre concerne l'étude de la réponse d'un solide au passage d'un ion rapide. Il est formé de trois parties :

En première partie, nous faisons des rappels généraux sur le processus de perte d'énergie des ions dans un solide donné, et sur l'échange de charge.

En deuxième partie, nous décrivons l'endommagement ou la création des défauts dans des solides (isolant, semi-conducteur, conducteur) et la pulvérisation des particules de la surface sous l'irradiation, sous les aspects expérimentaux et théoriques.

En dernière partie, nous décrivons l'aspect particulier de la canalisation des ions dans un cristal suivant une direction d'axe donnée, la perte d'énergie et l'échange de charge des ions en canalisation, et l'apport possible de cette dernière à la compréhension de l'endommagement des cristaux et surtout des cristaux radio-résistants.

## **A - Le ralentissement des ions lourds rapides et les mécanismes de changement de charge**

### **I. La charge de l'ion**

La particularité d'un ion lourd aux vitesses dites intermédiaires est qu'il n'a pas une charge fixe égale à son numéro atomique lorsqu'il traverse un milieu, car il perd et capture des électrons lors des collisions.

#### **1) Les processus d'échange de charge**

##### ***a. La capture électronique (MEC)***

Le transfert d'un électron d'un atome cible à une couche atomique du projectile peut se faire par trois processus principaux, la capture mécanique (MEC), la capture radiative (REC) et la capture résonante (RTE) [11, 51]. Les deux derniers processus sont des processus marginaux aux énergies considérées dans ce travail, et donc qui n'interviennent en général pas dans l'équilibre de charge. Nous n'en parlerons pas ici.

La capture mécanique est le phénomène de transfert d'un électron lié de la cible vers un état lié du projectile. Ce transfert s'effectue préférentiellement lorsque les orbitales initiale (de la cible) et finale (du projectile) se recouvrent en espace et en impulsion. Cette capture n'est pas accompagnée d'émission de photon. La conservation de l'impulsion est assurée par le recul de l'atome cible. Le paramètre d'impact entre le projectile et l'atome de la cible pour qu'une capture MEC se produise dépend de l'énergie du projectile, de son numéro atomique, du numéro atomique de la cible et des orbitales atomiques concernées.

##### ***b. Les processus de perte d'électrons***

Le projectile incident peut perdre ces électrons par l'excitation et/ou l'ionisation par impact nucléaire (résultant de l'interaction d'un électron du projectile avec le champ écranté d'un noyau cible), ou par impact électronique (lorsqu'un électron lié au projectile subit une collision binaire avec un électron de la cible).

En général, la section efficace d'ionisation et d'excitation par impact nucléaire est plus grande que celle d'ionisation et d'excitation par impact électronique.

## 2) L'équilibre de charge

La capture électronique mécanique (MEC) et l'ionisation électronique par impact nucléaire (NII) sont généralement les processus dominant pour l'échange de charge entre les ions lourds rapides et une cible donnée. Lorsque les ions pénètrent dans une cible, leur configuration électronique évolue avec les probabilités d'ionisation et de capture pour chaque niveau, conduisant à une charge moyenne, appelée charge d'équilibre, après une certaine profondeur de pénétration dans la cible.

A l'équilibre de charge, les probabilités de capture électronique et de perte d'électrons sont à peu près égales, et le nombre d'électrons dans une couche électronique  $n$  du projectile dépend du rapport :

$$\eta_n = \frac{V_{ion}}{V_n}, \text{ où}$$

$V_{ion}$  est la vitesse de l'ion incident ;

$V_n$  est la vitesse moyenne des électrons de la couche électronique  $n$ .

De façon simplifiée, si  $\eta_n < 1$ , la couche  $n$  est remplie et si  $\eta_n > 1$ , la couche  $n$  est vide.

Les fluctuations entre les événements de capture et d'ionisation mènent à une distribution des états de charge autour l'état de charge d'équilibre comme nous montre la Figure 1-1.

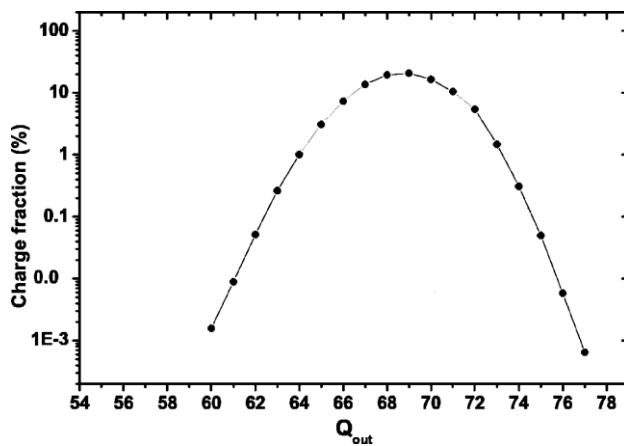


Figure 1-1 : la distribution des états de charge des ions Pb transmis à travers 1,12  $\mu\text{m}$  de silicium. La charge à l'équilibre est 68,5 (ions incidents  $\text{Pb}^{56+}$  29MeV/u) [3].

## II. Le ralentissement

On caractérise le projectile par sa masse atomique  $M_1$ , son numéro atomique  $Z_1$ , sa charge  $Q$  et sa vitesse  $V_1$  (ou son énergie cinétique spécifique  $E$ , en MeV par nucléon).

La cible est caractérisée par sa densité atomique  $N$ , la masse de l'atome cible  $M_2$  et son numéro atomique  $Z_2$ .

On ignorera dans tout ce travail les collisions nucléaires inélastiques, qui modifient la nature des noyaux projectile et cible, et dont la section efficace, limitée en première approximation aux sections géométriques des noyaux, est faible.

Le ralentissement d'un ion dans la matière est dû à deux processus :

- Les collisions élastiques liées aux chocs nucléaires, à grand paramètre d'impact par rapport aux rayons nucléaires : l'ion incident transmet de façon élastique de l'énergie cinétique au noyau d'un atome cible. Au cours de cette collision nucléaire, l'interaction est de type coulombien, plus ou moins écrantée suivant les dimensions respectives du paramètre d'impact et des tailles des orbitales électroniques du projectile et de la cible.

- Les collisions inélastiques liées à des excitations électroniques : l'ion incident interagit de façon inélastique avec les atomes de la cible (excitation électronique, ionisation des atomes au voisinage de la trajectoire des ions).

L'évolution de l'énergie d'un ion dans la matière résulte d'un grand nombre de transferts plus ou moins grands, elle est caractérisée par une valeur moyenne, qu'on appellera pouvoir d'arrêt de la cible pour le projectile, et par une dispersion autour de cette valeur moyenne.

Le taux de ralentissement de l'ion (ou le pouvoir d'arrêt de la cible) par unité de longueur est noté  $\frac{dE}{dx}$ , on peut l'exprimer en keV.nm<sup>-1</sup> ou en MeV.g<sup>-1</sup>.cm<sup>2</sup>.

Selon l'interaction inélastique ou élastique, un pouvoir d'arrêt électronique et un pouvoir d'arrêt nucléaire de la cible sont définis [33, 34]. Le pouvoir d'arrêt total est obtenu en sommant les pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{Totale}} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_n + \left(\frac{dE}{dx}\right)_e$$

## 1) Le pouvoir d'arrêt électronique de la cible

Le pouvoir d'arrêt électronique de la cible résulte principalement des collisions inélastiques entre l'ion incident et les électrons de la cible. Dans le calcul du pouvoir d'arrêt électronique de la cible, on distingue trois domaines de vitesses différents, définis par rapport

à la quantité  $Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$  où  $V_0$  est la vitesse orbitale de l'électron 1s de l'atome d'hydrogène

c.à.d. la vitesse de Bohr :  $V_0 = 2.2 \times 10^8 \text{ cm.s}^{-1}$ .  $Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$  est typiquement la vitesse moyenne des électrons liés au projectile dans le modèle de Thomas-Fermi.

Domaine des hautes vitesses  $V_1 \gg Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$  ;

Domaine des vitesses intermédiaires  $V_1 \sim Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$  ;

Domaine des basses vitesses  $V_1 \ll Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$ .

### ***a. Domaine des hautes vitesses***

Ce domaine correspond à :  $V_1 \gg Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$ . Le projectile est rapidement épluché et il interagit à travers un potentiel coulombien (Rutherford) avec les électrons de la cible.

#### **(i) Traitement classique**

Le traitement classique pour le pouvoir d'arrêt électronique a été réalisé par Bohr [Bohr 1913]. Dans un premier temps, on suppose que les électrons du milieu sont libres et la collision soudaine, c.à.d. que les électrons ne bougent pas pendant la collision. Cette hypothèse est valide lorsque le temps de collision est très petit par rapport au temps d'évolution de l'électron autour de son noyau.

L'énergie transférée  $T$  à un électron libre de masse  $m_e$ , à paramètre d'impact donné  $b$ , par l'ion de charge  $Z_1 e$  et de vitesse  $V_1$  s'écrit :

$$T = \frac{2Z_1^2 e^4}{m_e \times V_1^2} \times \frac{1}{b^2}$$

A petit paramètre d'impact, cette formule a des problèmes puisqu'elle prévoit un transfert d'énergie qui tend vers l'infini. Pour contourner cette difficulté, on définit un paramètre d'impact minimum  $b_{\min}$  qui correspond au transfert d'énergie maximum lors d'une collision frontale entre le projectile et l'électron.

$$T_{\max} = \Delta E(b_{\min}) = 2m_e V_1^2$$

et

$$b_{\min} = \frac{Z_1 e^2}{m_e V_1^2} = \frac{r_{\min}^0}{2}$$

où  $r_{\min}^0$  est la distance minimale d'approche à paramètre d'impact nul (diamètre de collision).

Maintenant, pour les grands paramètres d'impact, cette formule aussi a des problèmes puis qu'elle prévoit toujours un transfert d'énergie quand que le temps de collision est plus grand que la période de rotation de l'électron autour de son noyau. Pour résoudre ce problème, on définit le paramètre d'impact maximum,

$b_{\max} = \frac{V_1}{\omega}$  (où  $\omega$  est la pulsation caractéristique du mouvement de l'électron autour de son noyau),

qui correspond à la limite de la coupure adiabatique : au delà de  $b_{\max}$  le transfert d'énergie est nul.

Le pouvoir d'arrêt électronique est obtenu par l'intégration du transfert  $T$  sur toutes les valeurs du paramètre d'impact entre  $b_{\min}$  et  $b_{\max}$ , multipliée par la densité électronique rencontrée. Ceci donne la formule classique de Bohr :

$$\left(\frac{dE}{dX}\right)_e = \frac{4\pi \times Z_1^2 e^4}{m_e \times V_1^2} \times N \times Z_2 \times \ln\left(\frac{b_{\max}}{b_{\min}}\right)$$

où  $N$  est la densité atomique de la cible et  $Z_2$  le numéro atomique de la cible.

Maintenant, on peut faire une approche semi-classique pour le transfert d'énergie entre le projectile et les électrons du milieu lors des collisions binaires. Ce traitement prend en compte les états liés de l'électron, et il assimile l'électron lié à un oscillateur harmonique de fréquence caractéristique  $\varpi$ . Dans ce cas-là, un atome se comporte comme un ensemble d'oscillateurs de pulsation  $\varpi_i$  et de force d'oscillateur  $f_i$  qui vérifient la relation

$$\sum f_i = Z_2.$$

Dans l'expression du pouvoir d'arrêt, la somme pondérée des différents oscillateurs est équivalente à l'introduction d'une fréquence effective  $\varpi$  telle que

$$\ln(\varpi) = Z_2^{-1} \sum f_i \ln(\varpi_i).$$

L'énergie correspondante  $I = \hbar \varpi$  est souvent appelée potentiel moyen d'ionisation ( $\hbar$  est la constante de Planck). La relation  $I = Z_2 I_0$  ( $I_0 = 10\text{eV}$ ) donne des valeurs approchées de  $I$  pour  $Z_2 > 10$ . La coupure adiabatique  $b_{\max}$  est donnée par la formule suivante :

$$b_{\max} = \frac{1,123 \hbar V_1}{I}$$

Dans ce cas, l'expression de la perte d'énergie de Bohr semi-classique est :

$$\frac{dE}{dx} = 4\pi N Z_2 \frac{Z_1^2 e^4}{m_e V_1^2} [\ln B]$$

$$\text{où } B = \frac{b_{\max}}{b_{\min}}$$

Le Tableau 1 donne la valeur de la coupure adiabatique  $b_{\max}$  en fonction de chaque orbitale atomique du Ge – caractérisée par son énergie de liaison (EL)- pour des ions incidents à 6,5 et 29 MeV/u.

Orbitale atomique EL (en keV)	1s <sup>2</sup>	2s <sup>2</sup>	2p <sup>6</sup>	3s <sup>2</sup>	3p <sup>6</sup>	3d <sup>10</sup>	4s <sup>2</sup>	4p <sup>2</sup>
$b_{\max}$ (Å) 29 MeV/u	0,035	0,27	0,31	2,0	2,78	8,77	26,0	50,0
$b_{\max}$ (Å) 6,5 MeV/u	0,017	0,13	0,15	1,0	1,32	4,16	12,3	23,7

**Tableau 1: la coupure adiabatique  $b_{\max}$  Å en fonction des orbitales atomiques de l'atome de germanium (énergie de liaison) pour les ions plomb à deux énergies différentes.**

## (ii) Traitement quantique

Avec le traitement semi-classique, la perte d'énergie pour des grands paramètres d'impact est petite, et varie d'une façon continue, alors que l'énergie de l'électron lié est discrète et possède une valeur bien déterminée  $= \hbar \omega$ . Pour des petits paramètres d'impact, le traitement classique ne prend pas en compte les effets quantiques liés au principe d'incertitude de Heisenberg et à la nature ondulatoire de l'électron.

Bethe a fait un traitement quantique (non relativiste) de la perte d'énergie par un calcul perturbatif. Ce calcul montre que le traitement semi-classique aux grands paramètres d'impact reste valable si on considère un transfert d'énergie moyen. Donc la coupure adiabatique  $b_{\max}$  donnée par ce calcul reste égale à la valeur donnée par le traitement semi-classique de Bohr.

Le résultat pour le paramètre d'impact minimum quantique est :

$$b_{\min}^q = \frac{\hbar}{m_e V_1}$$

Le domaine de validité respectif de ces deux traitements, semi-classique et quantique, est donné par le paramètre :

$$\chi = \frac{b_{\min}}{b_{\min}^q} = \frac{Z_2 e^2}{\hbar V_1}.$$

Si  $\chi \gg 1$  le traitement semi-classique s'applique.

Si  $\chi \ll 1$  c.à.d. si l'énergie de la particule incidente est plus grande que l'énergie transférée lors de l'interaction de l'ion avec la cible, alors l'onde incidente de la particule est faiblement perturbée et un calcul perturbatif est valable.

Ce critère revient donc à considérer le maximum de ces deux valeurs.

Dans notre expérience, on a deux énergies incidentes, 29MeV/u et 6,5MeV/u,  $\chi$  est égal respectivement à 2,4 et 5,2. Donc le traitement classique pour le pouvoir d'arrêt électronique est valable.

Les deux régimes, dits de Bohr et de Bethe, ne se recouvrent pas. Bloch a montré qu'un traitement quantique non perturbatif permet de faire le lien entre les deux domaines d'application [Bloch 1933].

En général, les formules de pouvoir d'arrêt électronique ont la forme suivante :

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_e = \frac{4\pi \times Z_1^2 e^4}{m_e \times V_1^2} \times N Z_2 \times L_e$$

$$\text{avec } L_e = \ln \frac{b_{\max}}{b_{\min}}.$$

Le traitement perturbatif de Bethe, ainsi que la formulation de Bohr, s'étendent aux énergies relativistes. On doit alors modifier le terme  $L_e$  par :

$$L_e = \ln\left(\frac{2m_e V_1^2}{I}\right) - \frac{V_1^2}{c^2}$$

### ***b. Domaine des vitesses intermédiaires***

Dans ce domaine  $V_1 \approx Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$ , l'ion projectile n'est alors plus totalement épluché : il capture des électrons de la cible et son état de charge n'est plus égal à  $Z_1$ . Sa charge électrique moyenne devient inférieure à  $Z_1 e$ , et le pouvoir d'arrêt électronique devient ainsi plus faible que ne le prévoit la formule de Bethe pour un ion nu. Le domaine de validité de cette dernière peut alors être étendu en introduisant une charge effective  $Z_1^* = Z_1^{\frac{1}{3}} V_0$ . Ainsi, aux vitesses intermédiaires, le dépôt d'énergie passe par un maximum, et finit par décroître lorsque l'énergie des ions diminue. Les ions lourds accélérés aux énergies du GANIL sont pour la plupart dans ce domaine de vitesse.

### ***c. Domaine des basses vitesses***

$V_1 \ll Z_1^{\frac{2}{3}} \times V_0$ , à faible vitesse l'ion possède la plus grande partie de ses électrons.

Au cours de la collision entre l'ion et un atome cible, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent et il y a formation d'une quasi-molécule. Le calcul de potentiel d'interaction devient alors beaucoup plus compliqué. Néanmoins, des approches simples ont permis de montrer que le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion dans ce domaine de vitesse. Lindhard et Firsov [33, 18] ont chacun proposé une expression du  $\left(\frac{dE}{dX}\right)_e$  à faible vitesse.

$$-\left(\frac{dE}{dX}\right)_e = N \times 5.15 \times (Z_1 + Z_2) \times 10^{-15} \times \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{Firsov, exprimé en eV} \cdot \text{cm}^{-1})$$

$$-\left(\frac{dE}{dX}\right)_e = N Z_1^{\frac{1}{6}} \times 8\pi e^2 \times a_0 \times \frac{Z_1 Z_2}{\left(Z_1^{\frac{2}{3}} + Z_2^{\frac{2}{3}}\right)^{\frac{3}{2}}} \times \frac{V_1}{V_0} \quad (\text{Lindhard})$$

où  $a_0$  est le rayon de Bohr,  $a_0 = 0.529 \text{Å}$ .

### ***d. Dépendance en paramètre d'impact de la perte d'énergie : formalisme UCA***

Schiwietz et Grande ont développé des calculs UCA (Unitary Convolution Approximation) basés sur la théorie non-perturbative de Bloch. Leur calcul donne une expression analytique pour le transfert d'énergie à un électron cible en fonction du paramètre d'impact  $b_e$  [45].

$$T(b_e) = t(b_e, Z_1, V_1) \times h(2m_e V_1 b_e / \hbar) \times \sum_i f_i g\left(\frac{w_i b_e}{V_1}\right)$$

où  $t(b_e, Z_I, V_I)$  est le transfert d'énergie obtenu en supposant l'électron immobile lors de la collision :

$$t(b_e, Z_I, V_I) = \frac{2Z_I^2 e^4}{m_e V_I^2 b_e^2 (4\pi\epsilon_0)^2}$$

La sommation pondérée par la force d'oscillateur  $f_i$  est effectuée pour toutes les transitions possibles de l'électron vers l'état final de fréquence  $w_i$ . Les fonctions  $h$  et  $g$  sont données explicitement dans la référence [45]. Elles tiennent compte respectivement des collisions avec des faibles et des grands paramètres d'impact. Le passage du transfert d'énergie  $T(b_e)$  au taux de perte d'énergie s'effectue par convolution avec la densité électronique  $\rho_e$ .

Lorsque  $\chi \ll 1$  le pouvoir d'arrêt obtenu par UCA tend asymptotiquement vers le formule de Bethe [2], et lorsque  $\chi \gg 1$  ce pouvoir d'arrêt tend asymptotiquement vers le formule de Bohr [20].

## 2) Les collisions à grande distance

Dans un solide les électrons de valence et de conduction sont moins localisés autour des atomes. Les collisions avec les électrons de valence à grand paramètre d'impact conduisent à des excitations collectives. On peut traiter ces électrons comme un gaz libre qui est excité par des excitations de plasmon. La fréquence associée à ce quantum d'énergie est :

$$W_p = \left( \frac{4\pi\rho_e e^2}{m_e} \right)^{1/2}$$

où  $\rho_e$  est la densité électronique.

La perte d'énergie associée est donnée par la théorie diélectrique (semi-classique) du ralentissement dans un plasma :

$$\left( \frac{dE}{dX} \right)_e = \frac{4\pi \times Z_I^2 e^4}{m_e \times V_I^2} \rho_e \ln \left( \frac{2m_e \times V_I^2}{\hbar W_p} \right)$$

## 3) Le pouvoir d'arrêt nucléaire de la cible

Les interactions entre l'ion incident et les atomes de la cible sont traitées comme des chocs élastiques de deux particules, régis par les lois de la mécanique classique.

A partir du potentiel écranté de Thomas-Fermi, J.P. Biersack [5] a proposé l'expression analytique du pouvoir d'arrêt nucléaire :

$$-\left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{élastique}} = 4\pi N a \frac{M_1}{M_1 + M_2} Z_1 Z_2 e^2 \frac{\ln \epsilon}{2\epsilon(1 - \epsilon^{-1.49})}$$

$$\epsilon = \frac{a}{r_{\min}^0} \text{ (où } a \text{ est le rayon d'écran)}$$



$$a = \frac{a_0}{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}}$$

Le transfert direct de l'énergie par collisions élastiques entre l'ion incident et les noyaux de la cible conduit à un endommagement pour tous les types de cible (isolants, métaux...). Le mécanisme d'endommagement dans le domaine à basse vitesse, où le pouvoir d'arrêt nucléaire est dominant (par rapport au pouvoir d'arrêt électronique), a été très largement étudié depuis longtemps.

Quand la vitesse  $V$  de l'ion est élevée, très supérieure à la vitesse moyenne des électrons du milieu, soit  $V \gg V_0 Z_2^{2/3}$ , le pouvoir d'arrêt nucléaire est négligeable.

#### 4) Le pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire du germanium sur l'ion incident plomb

La Figure 1-2 montre le pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire du germanium sur l'ion plomb en fonction de son énergie incidente. Cette courbe est calculée par le code SRIM 2003.

Le pouvoir d'arrêt électronique est calculé pour un ion ayant une charge égale à la charge d'équilibre pour l'énergie incidente considérée.

A haute énergie, le pouvoir d'arrêt électronique augmente quand la vitesse diminue (il est proportionnel à  $(1/V_1)^2$ ). Puis, lorsque la vitesse de l'ion approche la vitesse moyenne de ces électrons  $V_1 \approx Z_1^{2/3} \times V_0$ , l'ion commence à se rhabiller et sa charge diminue, donc le pouvoir d'arrêt électronique ne continue pas à augmenter et il atteint un maximum.

A basse vitesse, le pouvoir d'arrêt électronique est négligeable par rapport au pouvoir d'arrêt nucléaire.

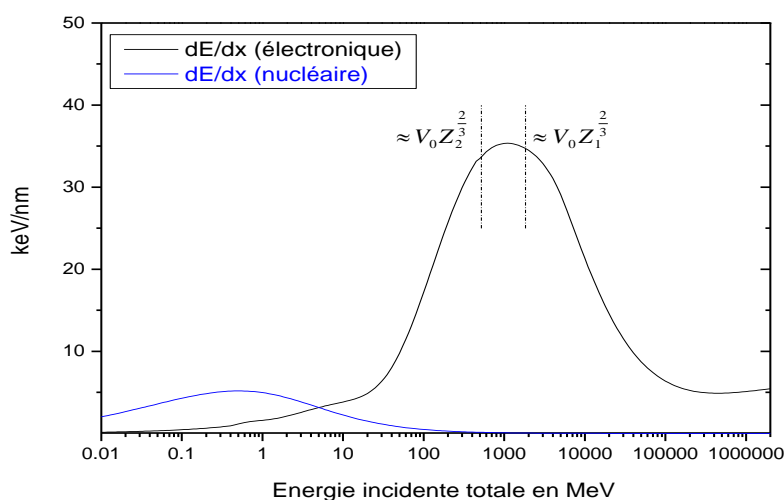


Figure 1-2 : la variation du pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire d'une cible de germanium pour un ion Pb incident en fonction de son énergie cinétique (SRIM 2003).

Si on s'intéresse à la gamme d'énergie de 1000MeV à 10GeV, comme c'est le cas dans le cadre de cette étude, le pouvoir d'arrêt nucléaire est négligeable. Le pouvoir d'arrêt électronique est défini à partir d'une charge effective, et donc à l'équilibre de charge. Dans les expériences que nous allons décrire l'état de charge ne correspond pas toujours à l'équilibre, et donc on doit prendre en compte les échanges de charge.

## **B - Les conséquences du dépôt d'énergie électronique dans un solide**

Quand un ion lourd rapide d'énergie de l'ordre de quelques MeV/u pénètre dans une cible solide, le processus de ralentissement est dominé par l'interaction avec les électrons de la cible. Les ions lourds rapides induisent une forte excitation électronique locale autour de leur trajectoire. Cette forte perturbation locale du système électronique peut conduire à la mise en mouvement des atomes de la cible. Le mouvement des atomes de la cible peut former des défauts dans le volume autour de la trajectoire [23]. Parfois ces défauts prennent l'aspect d'une zone continue, pour former ce qu'on appelle la trace [35].

Cette forte perturbation locale du système électronique peut aussi engendrer l'émission d'atomes de la surface de la cible. Dans ce cas là, on parle de *pulvérisation électronique*.

De nombreuses expériences d'irradiation de solides à haute énergie ont été réalisées pour étudier la modification des matériaux et la formation des traces [15, 47, 56, 50, 58], et pour étudier la pulvérisation électronique [37, 6, 10, 27, 55]. Ces études expérimentales nous permettent de faire la comparaison entre les processus de surface et de volume afin de comprendre mieux la réponse du milieu. En effet, la pulvérisation électronique est une manifestation en surface de la formation des défauts dans le volume qui peuvent donner des traces.

Plusieurs modèles ont été conçus pour décrire la formation des défauts et la pulvérisation électronique lors de la pénétration d'un ion lourd rapide dans un solide. Jusqu'à présent la question reste ouverte : quel modèle est capable de décrire ces phénomènes pour tous les types des matériaux ?

Dans cette partie, nous présentons les deux modèles théoriques principaux les plus utilisés pour expliquer les données expérimentales, le modèle de la pointe thermique et le modèle de l'explosion coulombienne, puis nous discutons de la pulvérisation électronique.

## **I. Les modèles théoriques**

### **1) Modèle de la pointe thermique**

Dans ce modèle, les électrons et les atomes sont décrits comme deux systèmes couplés [39]. L'énergie cinétique de l'ion incident est transférée aux électrons du milieu qui vont se thermaliser en  $\sim 10^{-15}$  sec après le passage de l'ion. Ces électrons chauds vont transférer leur énergie par couplage électron-phonon aux atomes froids du milieu. L'équilibre thermique entre les atomes froids et les électrons chauds est atteint après  $\sim 10^{-13}$  sec, qui est typiquement la période de vibration des atomes du réseau cristallin. La diffusion de la chaleur, de ces électrons au réseau atomique, est décrite par des équations classiques où la perte d'énergie électronique est la source de chaleur. Le terme d'échange de chaleur est donné par le produit  $g \times (T_e - T_a)$  avec  $g$  la constante de couplage et  $(T_e - T_a)$  la différence de température entre les

électrons et les atomes. Les deux équations différentielles de la chaleur sont exprimées dans une géométrie cylindrique car les trajectoires des ions rapides sont rectilignes :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] - g(T_e - T_a) + A(r, t)$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right] + g(T_e - T_a)$$

$T$ ,  $C$  et  $K$  sont respectivement les températures, les coefficients spécifiques de la chaleur, et les conductivités thermiques pour les électrons (index  $e$ ) et les atomes (index  $a$ ).

La fonction  $A(r, t)$  donne la déposition spatio-temporelle de l'énergie par le projectile aux électrons du milieu. Elle est formée d'une distribution gaussienne en temps et d'une distribution radiale pour les électrons  $\delta$  selon le modèle de Katz [57] :

$$A(r, t) = b S_e e^{-(t-t_0)^2 / 2S^2} F(r)$$

où  $S_e$  est le taux de perte d'énergie électronique. L'écart-type  $S$  pour la distribution gaussienne correspond au temps nécessaire pour que les électrons atteignent leur équilibre thermique. La majorité des électrons déposent leur énergie très près de la trajectoire du projectile en un temps  $t_0 \sim 10^{-15}$  sec. Le facteur de normalisation  $b$  assure que l'intégration de  $A(r, t)$  dans l'espace et dans le temps donne le taux de perte d'énergie électronique totale  $S_e$ .

La résolution numérique de ces deux équations différentielles [53] donne la température des atomes  $T_a(t, r)$  autour de la trajectoire du projectile en fonction du temps ( $t$ ) et de l'espace ( $r$ ). Dans ce modèle, la dimension de la trace est définie par le rayon de la zone qui contient suffisamment d'énergie pour fondre. La trace est formée au cours du refroidissement rapide de la matière. Ce modèle a réussi à reproduire la variation du rayon de la trace en fonction de la perte d'énergie électronique comme par exemple pour les oxydes cristallins  $\text{SiO}_2$  et  $\text{LiNbO}_3$  [38].

Le modèle de la pointe thermique peut aussi décrire les processus de surface comme la pulvérisation électronique. Ce modèle a la possibilité de calculer le nombre de particules évaporées quand un projectile rapide traverse la surface d'une cible donnée [39]. L'évaporation est déterminée par la température locale. Puisque la température autour de la trajectoire des ions diminue en fonction de la distance radiale, le rendement total de pulvérisation doit être déterminé à partir de l'intégrale en temps et en espace du taux d'évaporation locale  $\Phi(T_a(t, r))$ . La dépendance de la température avec le taux d'évaporation est donnée par la thermodynamique statistique et par l'équation Maxwell-Boltzmann :

$$Y_{tot} = \int_0^\infty dt \int_0^\infty \Phi(T_a(r, t)) 2\pi r dr$$

$$\Phi(T_a(r, t)) = N \sqrt{\frac{kT_a(t, r)}{2\pi M}} \exp\left(\frac{-U}{kT_a(t, r)}\right)$$

où  $N$  est la densité atomique,  $M$  la masse moléculaire de la cible,  $k$  est la constante de Boltzmann et  $U$  l'énergie de la liaison des atomes de surface.

Ce modèle prévoit que la dépendance de la pulvérisation électronique avec le taux de perte d'énergie varie selon  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^n$  avec  $n$  compris entre 1,5 et 2.

Le modèle de la pointe thermique est valable seulement dans les matériaux qui peuvent être amorphes. Dans les matériaux qui ne peuvent pas être amorphes comme les cristaux ioniques, par exemple LiF et CaF<sub>2</sub>, ce modèle n'est pas valable [55, 56].

## 2) Modèle de l'explosion coulombienne

Ce modèle suppose que le déplacement des atomes, après leur ionisation par l'ion incident, est dû à leur répulsion mutuelle. Ce déplacement peut produire des zones de défauts ou des traces [19, 32], et aussi de la pulvérisation des atomes en surface [25, 44]. Ce modèle suppose que le temps de neutralisation de la charge positive induite dans le milieu est plus grand que  $10^{-14}$  sec. Cette condition n'est remplie que dans les isolants puisque le temps de neutralisation de la charge induite peut atteindre quelques dizaines de picosecondes. Par contre, dans les conducteurs, la mobilité des électrons est très grande, et la neutralisation de la trace autour de la trajectoire de l'ion se fait en  $10^{-15}$  sec.

Ce modèle prévoit que la dépendance de la pulvérisation électronique avec le taux de la perte d'énergie varie selon  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^n$  avec  $n > 2$ .

## II. La pulvérisation électronique

La pulvérisation électronique concerne essentiellement des atomes (99%) mais aussi des ions (moins de 1%). Expérimentalement, on mesure généralement des rendements, qui représentent le nombre d'espèces émises par ion incident et éventuellement leur distribution angulaire. Pour les neutres, on peut mettre devant la cible des collecteurs pour intercepter les espèces émises. Par l'analyse des collecteurs, soit par RBS [55] soit par des réactions nucléaires avec les neutrons thermiques [46], on peut déterminer les rendements et la distribution angulaire. Pour les espèces chargées, on utilise généralement un spectromètre à temps de vol (voir chapitre II, partie B-II).

La dépendance de la pulvérisation électronique avec le taux de perte d'énergie électronique n'est pas linéaire. Généralement, la pulvérisation électronique est proportionnelle à  $\left(\frac{dE}{dx}\right)^n$ , où  $n$  varie d'une espèce émise à une autre [24].

La pulvérisation électronique dépend fortement de la charge du projectile [42]. Cette dépendance varie d'une espèce émise à une autre. En particulier, le rendement d'émission de l'hydrogène ne dépend que de la charge incidente à la surface de la cible, c'est à-dire qu'il ne dépend ni de la vitesse ni du numéro atomique du projectile [14]. Sa dépendance en charge est en  $q^n$  avec  $n \approx 3,3$ . Cette dépendance a été montrée pour différentes cibles et pour des énergies incidentes allant de quelques keV/u à quelques MeV/u [10, 14,40].

La pulvérisation électronique dépend de la vitesse incidente. Il a été montré expérimentalement que pour deux projectiles ayant le même taux de perte d'énergie dans une cible (isolant, cristal et amorphe), mais deux vitesses incidentes différentes, la pulvérisation électronique n'est pas la même. Elle est plus forte pour le projectile qui a la plus petite vitesse [27,41]. La vitesse agit sur le volume du dépôt de l'énergie : d'une part, quand la vitesse augmente, le rayon du dépôt de l'énergie de l'ion incident autour de sa trajectoire augmente. D'autre part les électrons rapides  $\delta$ , qui résultent des collisions frontales avec le projectile, ont un parcours dans la matière qui augmente avec la vitesse du projectile. C'est pourquoi la densité du dépôt d'énergie diminue lorsque la vitesse augmente. Cet effet de la densité du dépôt d'énergie sur la pulvérisation électronique est prévu par le modèle de la pointe thermique.

Les propriétés spécifiques du matériau jouent un rôle prépondérant sur la pulvérisation électronique. La forte excitation électronique induite par les ions lourds autour de leur trajectoire provoque une instabilité dans la structure atomique qui dépend du type de solide (isolant, semi-conducteur, conducteur). Ce qui implique que la pulvérisation, qui est une partie de la réponse du milieu à cette instabilité, dépend fortement du type de solide [36, 49]. Par ailleurs l'énergie de liaison de surface, qui varie d'une cible à une autre, agit aussi sur la pulvérisation, puisque les atomes doivent franchir cette barrière pour être émis.

## **C - L'apport original de la canalisation sur la pulvérisation électronique**

Dans un cristal, il y a des directions privilégiées qui sont formées par les alignements d'atomes le long de rangées et de plans. Lorsqu'un faisceau est aligné suivant la direction d'un axe ou d'un plan donné, les ions du faisceau peuvent subir la canalisation.

Lorsque le faisceau d'ions est incident suivant une orientation quelconque par rapport aux rangées et aux plans d'atomes, on parle de l'orientation quelconque ou random en anglais.

Dans cette partie, nous présentons les conditions de la canalisation des ions lourds suivant la direction d'un axe donné, l'échange de charge et la perte d'énergie des ions canalisés et spécialement le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal, qui constitue l'apport original de la canalisation sur la pulvérisation électronique.

### **I. Les conditions de la canalisation**

Les ions incidents qui rentrent le long de la direction d'un axe sont repoussés de façon corrélée par les atomes successifs d'une rangée d'atomes : on parle alors du potentiel des rangées d'atomes. Les ions incidents sont canalisés si leur paramètre d'impact par rapport aux rangées d'atomes est plus grand que l'amplitude des vibrations thermiques du réseau cristallin, et si l'angle de leur direction d'incidence par rapport à la direction de l'axe est plus

petit qu'un certain angle critique  $\Psi_c = \left( \frac{2QZ_{cible}e^2}{Ed} \right)^{1/2}$  (Figure 1-3), où  $Q$  est la charge de l'ion,  $E$  son énergie cinétique,  $Z_{cible}$  le numéro atomique de la cible,  $d$  la distance interatomique le long de la rangée d'atomes et  $e^2 = e^2/4\pi\epsilon_0$ . [11]

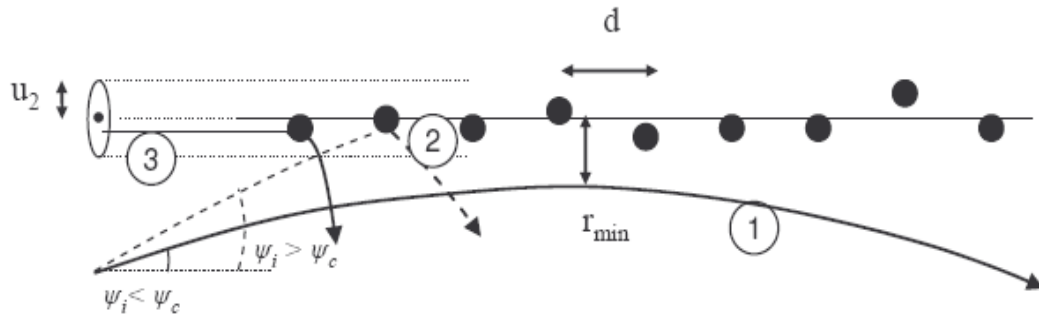


Figure 1-3: représentation schématique de trajectoires le long d'une rangée atomique: (1) trajectoire d'un ion (canalisé) qui entre loin de la rangée avec  $\Psi_1 < \Psi_c$ . (2) trajectoire d'un ion non canalisé qui entre loin de la rangée avec  $\Psi_1 > \Psi_c$ . (3) trajectoire d'un ion non canalisé qui entre à l'intérieur des vibrations thermiques des atomes cibles. Les échelles longitudinale et transverse ne sont pas respectées.

## II. Les ions bien canalisés et les ions de forte perte d'énergie

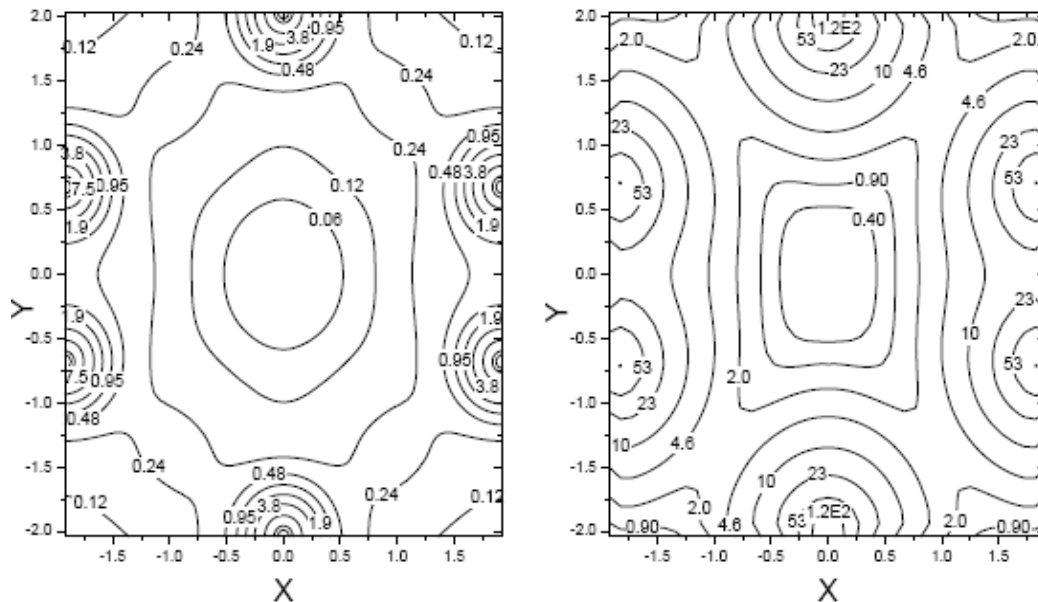


Figure 1-4: A gauche : carte de la densité électronique moyenne ( $\text{\AA}^{-3}$ ), le long de l'axe  $\langle 110 \rangle$  du silicium. A droite : carte de l'énergie potentielle transverse (eV) d'une particule de charge unitaire, moyennée le long du même axe. [21].

A défaut du germanium nous montrons des cartes de potentiel et de densité électronique du silicium, qui a des propriétés voisines de celles du germanium et le même système cristallin. La figure 4 montre, à droite, une carte du potentiel continu des rangées d'atomes dans le plan transverse de l'axe  $\langle 110 \rangle$  d'un cristal de silicium pour un ion de charge positive unité. Ce potentiel est la moyenne de tous les potentiels coulombiens écrantés des atomes des rangées pour une profondeur infinie. Ce potentiel est nul au centre et il croît lorsqu'on s'approche des rangées d'atomes.

La Figure 1-4, à gauche, montre une carte de la densité électronique moyenne dans le plan transverse de l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Cette densité est faible au centre parce qu'il n'y a qu'une faible fraction des seuls électrons de valence et elle augmente lorsque la distance aux rangées d'atomes diminue. C'est au voisinage des rangées que sont localisés les électrons de cœur des atomes.

Chaque ion canalisé a une énergie transverse [11] qui détermine son espace transverse accessible. Par exemple, les ions qui sont au centre de l'axe et ont une trajectoire parallèle à celui-ci ont une très faible énergie transverse. Comme ils vont rester confinés dans l'espace limité par le contour qui a la valeur de leur énergie transverse, ces ions vont rencontrer des densités électroniques faibles. Alors leur taux d'échange de charge et leur perte d'énergie sont faibles. On désigne ces ions par les ions bien canalisés.

Par contre les ions qui rentrent près des rangées d'atomes ont des grandes énergies transverses. Ces ions peuvent aller partout dans l'espace transverse c'est-à-dire qu'ils peuvent explorer toutes les densités électroniques avec une équiprobabilité, les grandes lorsqu'ils voyagent à proximité des rangées d'atomes et les faibles lorsqu'ils passent au centre de l'axe. Alors leur taux d'échange de charge et leur perte d'énergie sont plus grands que pour les ions bien canalisés. On appelle ces ions les ions mal canalisés ou de forte perte d'énergie.

## 1) L'échange de charge

Comme nous l'avons déjà écrit (Chapitre 1 :A -I. 1)a), la capture électronique mécanique (MEC) et l'ionisation électronique par impact nucléaire (NII) sont généralement les processus dominants pour l'échange de charge entre les ions lourds rapides et une cible solide donnée, dans le domaine de vitesse considéré dans ce mémoire.

Pour les ions qui entrent dans l'axe loin des rangées d'atomes (les ions bien canalisés), le MEC et le NII sont supprimés. Donc l'état de charge de ces ions évolue grâce à d'autre processus d'échange de charge comme le REC et l'EII qui sont respectivement la capture radiative et l'ionisation par les électrons du milieu. Ces processus sont de faibles sections efficaces par rapport à celles des processus MEC et NII aux énergies décrites dans ce travail. Donc, pour les ions bien canalisés qui rencontrent des faibles densités électroniques, leur état de charge n'évolue pas ou que très peu à l'intérieur du cristal et ils peuvent rester gelés dans leur état de charge initial.

Par contre, en ce qui concerne les ions qui entrent près des rangées d'atomes (les ions de forte perte d'énergie), leur état de charge va évoluer énormément et rapidement si la charge à l'incidence est loin de l'état de charge à l'équilibre.

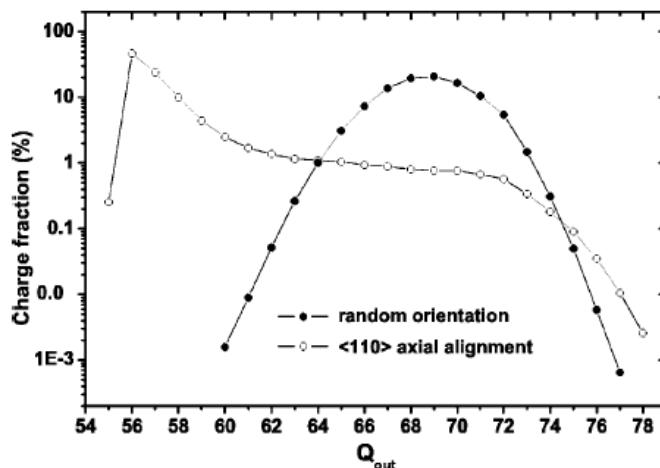


Figure 1-5: distributions des états de charge d'ions incidents  $Pb^{56+}$  à 29 MeV/u transmis à travers 1,12  $\mu m$  de silicium. Les cercles pleins et les cercles vides correspondent respectivement au cas d'une orientation quelconque et au cas d'alignement axial [3]

La Figure 1-5 montre deux distributions d'états de charge d'ions Pb de 29MeV/u transmis à travers 1,12  $\mu\text{m}$  de silicium à partir d'une charge incidente 56+. Nous avons déjà discuté de la distribution des états de charge dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins) (Chapitre 1 :A -I. 2)).

La distribution des états de charge dans le cas de l'alignement axial est plus large que dans le cas random. Elle s'étend de l'état de charge incident 56+ jusqu'à l'état de charge 78+. Les ions 56+ sont les ions bien canalisés qui sont restés gelés dans leur état de charge initial. Les ions 55+ sont aussi des ions bien canalisés qui ont cependant fait une capture radiative ou qui ont capturé un électron pendant leur passage dans la couche amorphe à l'entrée ou à la sortie du cristal. Cette distribution large reflète les énergies transverses des ions et leur espace transverse accessible dans l'axe, c'est-à-dire les différentes densités électroniques moyennes rencontrées par les ions dans l'axe.

Dans le cas de l'alignement axial, on a des ions à la sortie du cristal avec des états de charge qui s'étendent jusqu'à 78+. Cet état de charge n'est pas observé avec la sensibilité de l'expérience dans le cas random, dans lequel les ions incidents font cependant des collisions proches avec les atomes du cristal. Ceci est dû à l'effet dit de superdensité [22] : pour une direction d'incidence quelconque les ions excités par une collision proche ont en général le temps de se désexciter avant une prochaine collision. Par contre pour les ions qui frôlent une rangée les collisions successives se suivent à une fréquence trop grande (période  $T=d/V$ ,  $d$  étant la distance interatomique, et  $V$  la vitesse de l'ion) pour qu'une désexcitation ait le temps d'avoir lieu; les électrons portés dans un état excité ont une probabilité accrue d'être arrachés dans l'une des collisions suivantes, ce qui mène à l'augmentation de l'état de charge.

## 2) La perte d'énergie

La trajectoire des ions canalisés dépend de leur paramètre d'impact à l'entrée du cristal. Donc la perte d'énergie des ions, qui dépend de la densité électronique rencontrée, dépend aussi de leur paramètre d'impact à l'entrée du cristal.

Pour la pulvérisation électronique, il est important de connaître le taux de perte d'énergie des ions à l'entrée du cristal. L'expérience ne donne pas ce pouvoir d'arrêt. Donc il est nécessaire de faire des simulations.

La Figure 1-6 montre la carte du taux de la perte d'énergie des ions  $\text{Pb}^{72+}$  à 29MeV/u dans le plan transverse de l'axe  $\langle 110 \rangle$  du germanium. La partie gauche correspond à un zoom près d'une rangée d'atome. Ces cartes sont obtenues par des simulations Monte-Carlo effectuées par A. L'Hoir. Il a utilisé pour calculer le transfert d'énergie aux électrons le programme CASP (Convolution Approximation for Swift Particules). Ce programme a été conçu par P.L. Grande and G. Schiwietz. Il est basée sur la théorie UCA (Unitary Convolution Approximation) [45, 20]. Ces simulations prennent en compte les vibrations thermiques des atomes.



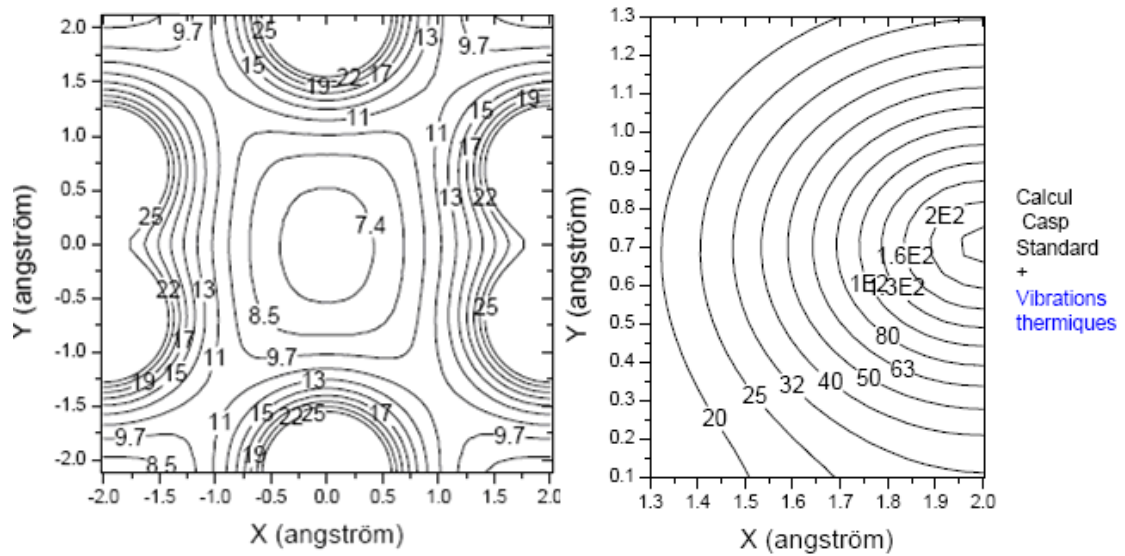


Figure 1-6: contour du taux de perte d'énergie (keV/nm) de  $\text{Pb}^{72+}$  à 29 MeV/u dans l'axe  $\langle 110 \rangle$  du germanium

On calcule le transfert d'énergie en fonction du paramètre d'impact aux électrons. On prend les électrons séparément selon leur orbitale atomique. Pour chaque orbitale on prend en compte le paramètre d'impact  $b_{\max}$  qui correspond à la coupure adiabatique. Pour les électrons de valence ( $4s^2$  et  $4p^2$ ), le paramètre d'impact  $b_{\max}$  est très grand (Tableau 1). Donc l'ion qui rentre dans un canal donné de direction  $\langle 110 \rangle$  transfère de l'énergie aux électrons de valence dans ce canal et dans les canaux voisins. Il en est de même pour les électrons du cœur  $3d^{10}$  pour lesquels la coupure  $b_{\max}$  est presque deux fois la largeur de l'axe. Donc, pour les électrons de cœur  $3d$ , le transfert d'énergie n'est pas seulement local dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$ .

Entre les ions bien canalisés (au centre de l'axe) et les ions qui rentrent à coté des rangées d'atomes, il y a presque un facteur 32 sur le taux de perte d'énergie (le contour le plus proche de la rangée correspond à 240 keV/nm).

Maintenant nous allons présenter des distributions de perte d'énergie des ions canalisés obtenues expérimentalement. La Figure 1-7 montre deux distributions de perte d'énergie des ions de  $\text{Pb}^{56+}$  de 29 MeV/u transmis à travers un cristal de silicium de  $1,12 \mu\text{m}$ . La distribution qui est étroite correspond au cas d'une orientation quelconque. La distribution qui est large correspond au cas de l'alignement axial. La perte d'énergie est normalisée à la perte d'énergie random et corrigée par la charge quadratique moyenne dans la cible (Chapitre 3 :D -II. ).

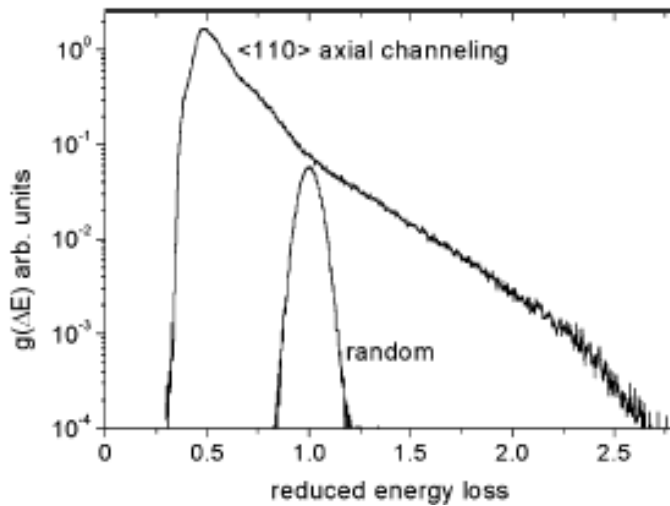


Figure 1-7: distributions de la perte d'énergie obtenues pour des ions  $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u transmis à travers un cristal de silicium de 1,12  $\mu\text{m}$  d'épaisseur dans les deux cas, alignement axial  $\langle 110 \rangle$  et orientation quelconque (random). La perte d'énergie est normalisée à la valeur de la perte d'énergie random et corrigée par la charge quadratique dans la cible. Les intégrales ne sont pas normalisées [11].

La distribution de perte d'énergie des ions dans le cas random est symétrique par rapport à la valeur moyenne 1. Cette distribution est due aux fluctuations statistiques des transferts d'énergie dans les collisions successives et des échanges de charge des ions à l'intérieur du cristal. Il faut noter que le taux de perte d'énergie des ions dans le cas random est le même dans tout le cristal puisque le cristal est mince (on néglige la variation de l'énergie).

Dans le cas de l'alignement axial, la distribution s'étend d'une perte d'énergie égale à 0,3 fois la perte d'énergie random jusqu'à plus de 2,5 fois la perte d'énergie random.

Les ions de faible perte d'énergie par rapport au cas random correspondent aux ions bien canalisés (ils rencontrent des faibles densités électroniques d'une part, et, d'autre part, leur état de charge n'augmente pas). Le taux de perte d'énergie des ions bien canalisés est le même dans tout le cristal.

Les ions qui ont la plus grande perte d'énergie sont les ions de fortes pertes d'énergie qui rasant les rangées d'atomes à l'entrée du cristal. Le taux de perte d'énergie de ces ions lorsqu'ils rasant les rangées d'atomes est beaucoup plus grand que 2,5 fois le taux de la perte d'énergie random. Mais la perte d'énergie mesurée est 2,5 parce qu'on mesure la perte d'énergie intégrée sur tout le cristal. En effet, les ions de forte perte d'énergie ne restent pas tout le temps à côté des rangées d'atomes, leur trajectoire oscille entre les rangées atomiques de l'axe.

Dans un cristal mince, en sélectionnant des ions transmis selon leur perte d'énergie et leur état de charge, on peut déterminer leur paramètre d'impact à l'entrée du cristal. C'est le cas de cette étude. Par contre, si le cristal est épais, l'énergie transverse des ions augmente par augmentation du nombre de diffusions angulaires multiples sur les noyaux et sur les électrons de la cible, et ces ions se décanalisent progressivement. Donc, dans ce cas là, on ne peut pas établir aisément la corrélation entre la perte d'énergie et l'état de charge des ions à la sortie du cristal avec leur paramètre d'impact à l'entrée du cristal. Il faut en effet prendre en compte dans les simulations associées l'estimation du réchauffement transverse dû à la diffusion

multiple. De telles études ont été réalisées par notre collaboration au GANIL et au GSI (21, 1, 13)

### III. L'intérêt de la canalisation

Avec la canalisation, on peut regarder les effets différentiels sur les rendements d'émission ionique pour les ions bien canalisés et les ions de forte perte d'énergie.

La Figure 1-8 illustre l'émission des électrons pour des ions  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29 MeV/u, et transmis à travers un cristal de silicium de 1,1  $\mu\text{m}$  aligné selon la direction axiale  $\langle 110 \rangle$ . Les multiplicités d'électrons à l'entrée du cristal, ainsi que la perte d'énergie sont représentées pour des ions bien canalisés qui restent gelés dans l'état de charge incident ( $Q_{\text{out}}=56$ ) et des ions mal canalisés ( $Q_{\text{out}}=72$ ). Les distributions correspondant à une orientation quelconque (random) sont également indiquées. Notons que les ions mal canalisés qui rentrent près des rangées émettent typiquement deux fois plus d'électrons à l'entrée du cristal, et ont une perte d'énergie intégrée sur l'épaisseur du cristal supérieure à la perte random (jusqu'à plus de deux fois la perte moyenne hors canalisation). Par contre, les ions bien canalisés, qui sondent de faibles densités électroniques, ont une perte d'énergie typiquement deux fois inférieure à celle d'ions non canalisés et émettent moins d'électrons. Particulièrement, les ions qui sont très bien canalisés (hyper canalisés), c'est à dire ceux qui rentrent dans le cristal au centre de l'axe  $\langle 110 \rangle$ , ont les multiplicités les plus faibles.

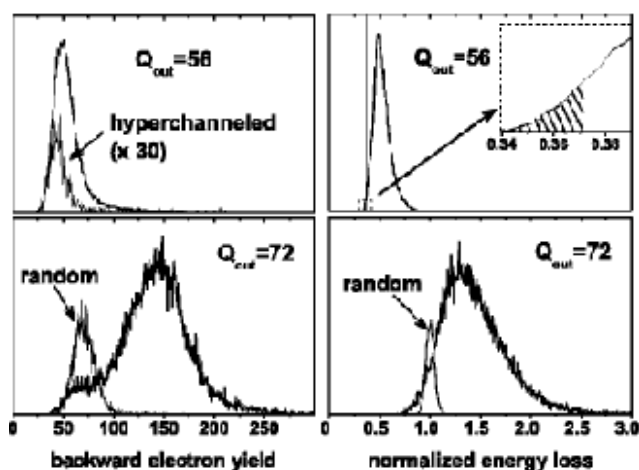


Figure 1-8: à gauche, multiplicité des électrons émis de la surface du cristal de silicium de 1,12  $\mu\text{m}$  pour les ions Pb transmis avec l'état de charge en sortie 72+ (alignement axial et orientation quelconque) et 56+ (alignement axial). A droite, la perte d'énergie normalisée correspondante (ions incidents  $\text{Pb}^{56+}$  à 29 MeV/u) [3].

Avec la canalisation, nous pouvons étudier l'émission ionique associée à des dépôts en énergie supérieurs à 100 keV/nm, c'est à dire bien au delà des frontières atteintes avec des projectiles monoatomiques (20 keV/nm-40 keV/nm).

De plus, ce dépôt d'énergie est engendré pour l'essentiel par des collisions à petit paramètre d'impact qui épluchent fortement les premiers atomes des rangées.

Cette situation particulière a des conséquences importantes vis-à-vis de la répulsion coulombienne: puisque les ions rasent longuement les rangées, il y a production quasi-instantanée d'un grand nombre d'atomes alignés très fortement épluchés. On conçoit que ceci

puisse conduire à l'expulsion des premiers atomes de la rangée dans une direction parallèle à celle-ci.

## Chapitre 2 : Dispositif expérimental

L'expérience de pulvérisation ionique a été réalisée au GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) dans la salle SPEG (Spectromètre à Perte d'Energie de GANIL) (Figure 2-1). Après une présentation du mode de production du faisceau de plomb et de ses caractéristiques, nous décrirons le dispositif expérimental et les différents détecteurs utilisés puis le principe du système d'acquisition.

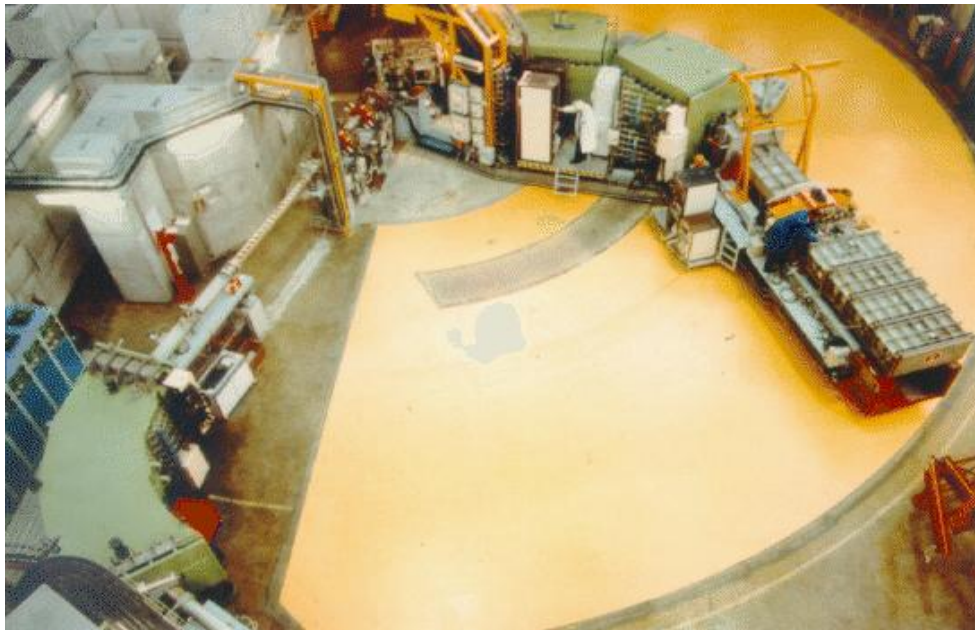


Figure 2-1 : La salle d'expérience et le spectromètre SPEG

### A - Le Faisceau

#### I. Production

##### 1) Le GANIL

Les ions sont accélérés par le Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL) à Caen dans la Région de Basse Normandie, au Nord de la France.

Dans sa version originale (premiers faisceaux en 1983), il accélère des ions stables à des énergies permettant d'observer des réactions nucléaires, sans toutefois produire de particules subnucléoniques. Plusieurs évolutions ont permis d'atteindre des énergies maximum de 95 MeV/nucléon pour les ions légers jusqu'à l'argon, et 24 MeV/nucléon pour l'uranium. Des gains en intensité ont également permis de produire des ions secondaires, avec notamment le système de production SSSI (Figure 2-2). En 2001 a été mis en service le dispositif SPIRAL de source et d'accélération d'ions radioactifs, non représenté dans la figure. Nous nous contenterons de décrire la production et l'accélération de faisceaux stables, qui sont l'objet de notre étude.

## GANIL Accélérateur et Aires

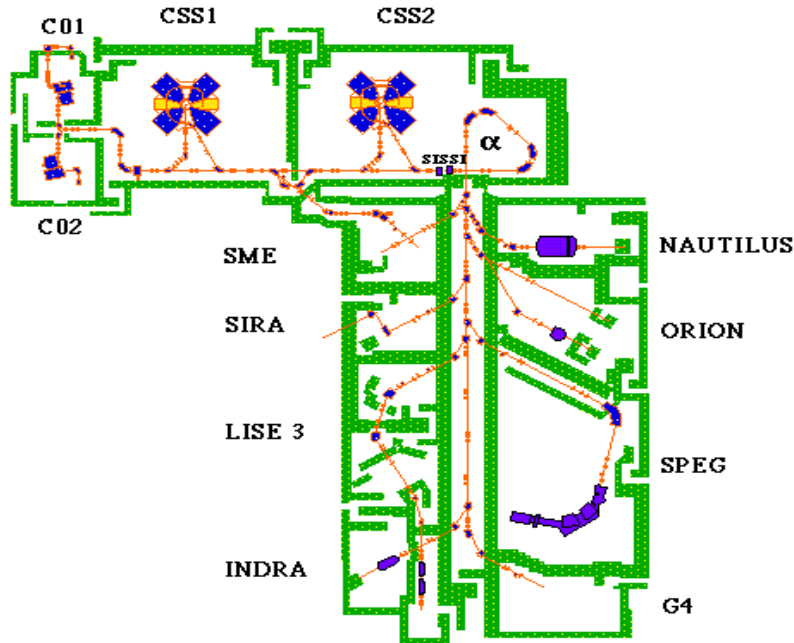


Figure 2-2 : Accélérateurs et aires expérimentales du GANIL (version faisceaux stables antérieure à 2001)

### 2) La source et les phases d'accélération

Les ions sont produits par une source ECR (Electron Cyclotron Resonance). Le principe de la source ECR [51] est basé sur l'ionisation par collisions électroniques des atomes introduits dans la source. Le plasma formé par les électrons et les ions est confiné par des champs magnétiques statiques créés par un solénoïde (champ magnétique longitudinal) et un hexapôle (champ magnétique transverse). Un champ électrique radiofréquence est appliqué dans le plasma pour chauffer les électrons.

Les ions sont ensuite préaccélérés dans un cyclotron compact, C01 ou C02, à quelques centaines de keV puis injectés dans le premier cyclotron à secteurs séparés CSS1.

A la sortie de CSS1, les ions ont acquis une énergie allant de 4 à 13 MeV/u. Les ions sont alors épluchés (multi-ionisés) par une cible mince de carbone pour augmenter leur charge et injectés dans un second cyclotron CSS2 identique au premier. Ceci permet d'obtenir en sortie de CSS2 des ions dont l'énergie peut atteindre 24 MeV/u pour le  $^{238}\text{U}^{58+}$ , 96,4 MeV/u pour le  $^{12}\text{C}^{6+}$ .

Avant d'aller vers les salles d'expériences, les ions passent par le spectromètre alpha, qui comporte deux dipôles semblables, pour améliorer la résolution en énergie, qui est de l'ordre de 0,05% et pour réduire la divergence angulaire et la taille du faisceau (émittance).

Le faisceau est pulsé à une fréquence voisine de 10 MHz qui correspond à la radiofréquence du cyclotron. Il est formé de paquets d'ions avec une extension en temps, pour chaque paquet, de l'ordre de 1 ns.

Les flux maxima sont d'environ  $10^{13} \text{ ions} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$  pour les ions légers. Cependant on peut diminuer le flux jusqu'à quelques centaines d'ions par seconde par de nombreux moyens (grilles « pepperpot », fentes de réduction d'émittance, supprimeur de paquet, modulation d'intensité...).

## **II. Caractéristique du faisceau extrait**

Dans notre expérience, le faisceau doit être aligné suivant l'axe  $\langle 110 \rangle$  d'un cristal de Ge. Pour cela, on doit avoir un faisceau de divergence angulaire, dans les deux plans, horizontal et vertical, plus petite que l'angle critique (de l'ordre du milliradian) qui est nécessaire pour l'alignement. L'intensité du faisceau doit être faible pour qu'il n'y ait pas d'empilement entre deux événements successifs enregistrés sur notre acquisition. Ces conditions sont remplies grâce au spectromètre alpha et aux différents jeux de fentes qu'il comporte.

Le faisceau que nous avons utilisé avait une intensité moyenne de 500 pps. Son profil, évalué grâce à un profileur à gaz, est en forme de gaussienne de largeur à mi-hauteur de 2 mm au niveau de la cible.

On a utilisé un faisceau d'ions de plomb à haute énergie (29 MeV/u) avec deux états de charge,  $72+$  et  $56+$ , et à 6,5 MeV/u avec l'état de charge  $28+$ . Pour cette énergie, il était prévu d'utiliser aussi l'état de charge  $59+$ , mais à cause de problèmes techniques, on n'a pas pu le faire.

### **B - Le cristal et le dispositif de détection**

La Figure 2-3 présente une photographie de la chambre à collisions, et la Figure 2-4 présente schématiquement le dispositif expérimental que nous avons utilisé lors de notre expérience de pulvérisation ionique du cristal mince de germanium, avec des ions  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$  de 29 MeV/u et  $\text{Pb}^{28+}$  de 6,5 MeV/u.

Le cristal cible est monté sur un goniomètre qui permet d'aligner le faisceau avec la direction de l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Le cristal est porté à un potentiel positif de 8,2 kV.

Le détecteur à électrons, situé à 3 cm à l'arrière (face de sortie) de la cible, collecte par différence de potentiel les électrons émis en surface à la sortie du cristal lors du passage des projectiles. La différence de potentiel de 2 kV est obtenue en polarisant le détecteur à 10 kV environ. Ce détecteur, à base de galettes à micro-canaux elles-mêmes polarisées à 2 kV, délivre un signal qu'on appelle Start, le temps de référence pour chaque passage d'ion incident.

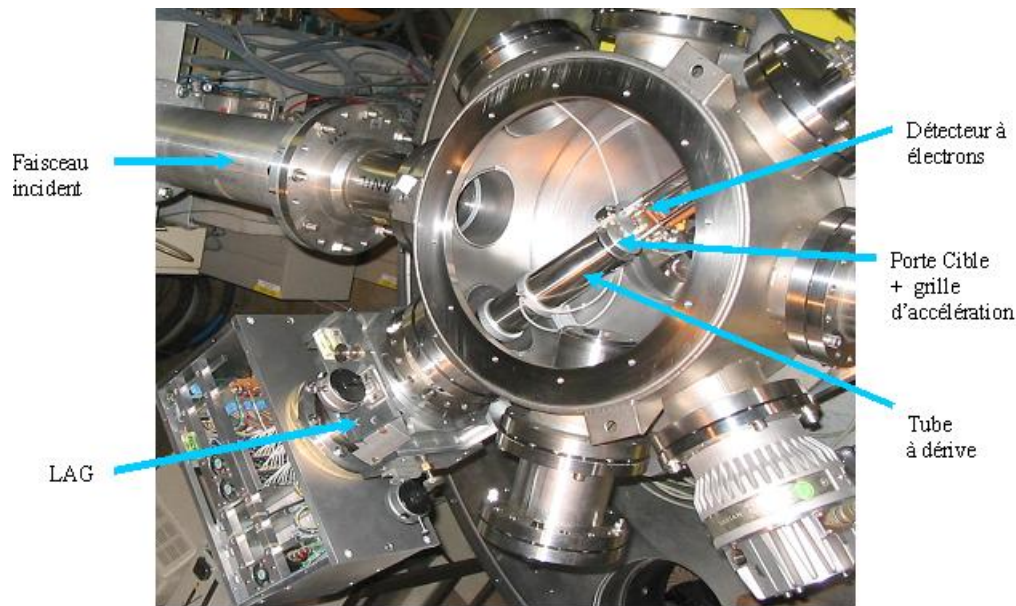


Figure 2-3 : la chambre de collisions

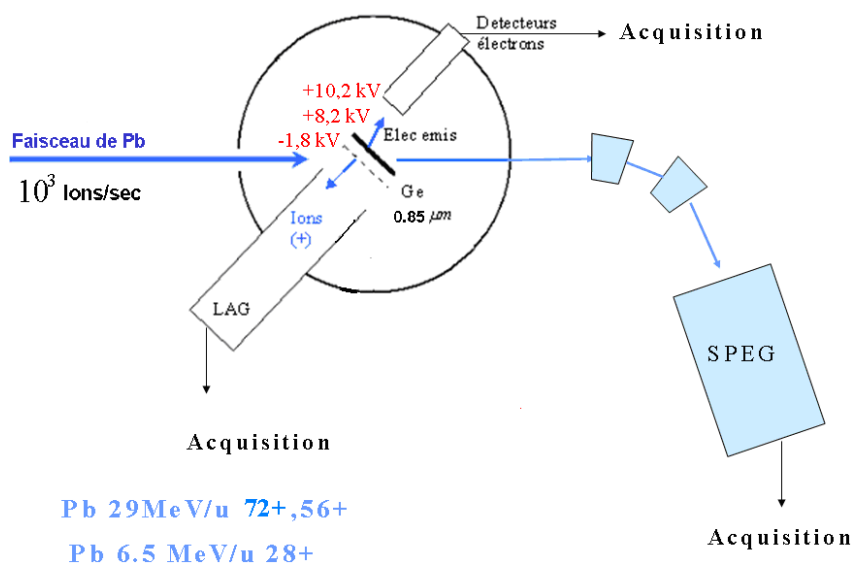


Figure 2-4 : représentation schématique de la détection des ions secondaires émis en surface du cristal et de l'analyse magnétique des ions transmis

La grille devant le cristal permet d'appliquer un champ électrique uniforme perpendiculaire à la surface de celui-ci pour extraire les ions secondaires positifs (majoritairement une fois chargés) émis en surface du cristal cible. Elle est portée à -1,8 kV, ce qui représente une différence de potentiel de 10 kV avec la cible. La distance entre la grille et le cristal est de 1 cm. On désigne le parcours des ions secondaires entre le cristal et la grille par la phase d'accélération. La vitesse atteinte à la fin de cette phase dépend de la masse des ions.

Le tube à dérive en face de la grille, de longueur de 35 cm et de diamètre de 5 cm, est porté au même potentiel que la grille. Le parcours des ions secondaires à l'intérieur du tube, désigné par la phase de temps de vol libre, permet de séparer en temps les différents ions secondaires émis en fonction de leur vitesse à la fin de la phase d'accélération.



Le spectromètre à temps de vol (LAG), à base de 2 galettes à micro-canaux couplées à une multi-anode, détecte les ions secondaires en fonction de leur temps d'arrivée ou de vol, après leur parcours dans le tube à dérive. Pour chaque ion détecté, le LAG délivre un signal qu'on appelle Stop. La différence en temps entre le signal Stop et le signal Start donne le temps de vol des ions, qui dépend de leur masse et de leur charge. Le LAG peut détecter plusieurs ions secondaires arrivant en même temps (grâce à sa multi-anode), ce qui permet de mesurer la multiplicité, qui est le nombre de Stops reçus par ion incident. Ce nombre est à rapprocher de la grandeur physique qui est le rendement d'ions secondaires émis par la cible.

Les deux dipôles magnétiques du spectromètre SPEEG dévient les ions transmis suivant leur charge et leur vitesse en sortie du cristal. La chambre à dérive fournit la distribution en rigidité magnétique  $B\rho$  des ions qui le traversent (où  $\rho$  est le rayon de courbure de la trajectoire d'un ion dévié par le champ magnétique  $B$  des deux dipôles). Cette distribution permet d'identifier la charge et de calculer la perte d'énergie des ions transmis. La résolution au plan focal image est telle qu'une variation de 1% de la rigidité magnétique se traduit par un déplacement horizontal de 8 cm sur la chambre à dérive.

Pour chaque ion incident, le signal Start déclenche l'acquisition des données pour les différents détecteurs. Ainsi on mesure la charge de l'ion transmis et sa perte d'énergie d'une part, et, d'autre part, on détecte l'ensemble des ions secondaires émis depuis la surface par temps de vol pendant une certaine fenêtre de temps (de l'ordre de la microseconde).

## I. La cible

On a fait l'expérience avec un cristal mince de germanium. On discute d'abord le choix de la cible puis son élaboration et le choix de l'axe d'alignement, puis on détaille les différentes caractérisations de la surface faites avant et après l'expérience, et enfin on explique le mode expérimental d'alignement du cristal suivant une direction cristalline donnée avec le faisceau incident.

### 1) Choix de la cible

On a cherché un matériau pour lequel la différence entre le taux de perte d'énergie des ions bien canalisés et celui des ions mal canalisés (fortes pertes au voisinage des rangées ou des plans) permet de franchir le seuil d'endommagement.

Nous avons choisi le germanium comme cristal parce qu'il appartient à la famille des semi-conducteurs peu radio-sensibles au dépôt d'énergie électronique. En effet, des expériences d'irradiation par des ions lourds rapides (Pb, U), où la perte d'énergie peut atteindre 35 keV/nm, n'ont jamais révélé de création de défauts étendus dans des cristaux de germanium ou de silicium autour des trajectoires des ions incidents. Dans les cristaux de silicium, seuls des ions fullerènes  $C_{60}^+$  de 30 et 40 MeV, qui déposent en début de parcours 48 et 57 keV/nm respectivement, ont permis d'engendrer des traces continues [9, 15]. Ces résultats ont suscité une étude plus récente avec des ions atomiques Bi et U très énergétiques, au maximum de la perte d'énergie électronique ( $\sim 40$  keV/nm) [28], qui a montré l'existence de traces discontinues dans des cristaux de germanium, la valeur seuil de la perte d'énergie électronique pour la formation de traces continues étant estimée à 46-49 keV/nm.

De plus, le germanium existe dans la nature sous forme de cinq isotopes ( $^{70}\text{Ge}$  20,5%,  $^{72}\text{Ge}$  27,4%,  $^{73}\text{Ge}$  7,8%,  $^{74}\text{Ge}$  36,5%,  $^{76}\text{Ge}$  7,8%). Cette distribution isotopique doit en principe aider à identifier le germanium dans le spectre de temps de vol s'il y a des impuretés émises en surface avec des masses proches de celles des atomes du cristal.

Pour l'épaisseur, nous avons choisi un cristal mince afin de corrélérer la perte d'énergie et l'état de charge des ions transmis à travers la cible avec leur paramètre d'impact à l'entrée du cristal (Chapitre 1 :C -II. )

## 2) Elaboration du cristal et choix de l'axe d'alignement

Le cristal de germanium utilisé lors de notre expérience de pulvérisation a été fabriqué à l'Université d'Aarhus au Danemark, par croissance épitaxiale lors d'une évaporation sur un substrat de silicium dont la surface est un plan (100). La deuxième étape dans l'élaboration de la cible est l'électrolyse du substrat par attaque électrochimique afin de libérer la deuxième face du germanium [12]. Le désaccord de paramètre de réseau entre le silicium ( $a=5.431 \text{ \AA}$ ) et le germanium ( $a=5.657 \text{ \AA}$ ) induit des contraintes et des défauts à l'interface.

Pour faire disparaître les défauts induits par la croissance épitaxiale du germanium, nous avons recuit le cristal à  $600^\circ\text{C}$  sous vide secondaire pendant 5 heures. Le gradient de la température était de  $10^\circ \text{C}$  par minute. La température,  $600^\circ\text{C}$ , pas trop proche de la température de fusion ( $937^\circ\text{C}$ ), favorise la mobilité des atomes et une reconstitution de la maille de germanium dans la zone de croissance.

Après, le cristal a été conservé sous pression atmosphérique sans précaution particulière, jusqu'au nettoyage de surface précédant l'expérience (voir plus loin).

Nous avons choisi d'utiliser comme direction de canalisation la direction de l'axe  $\langle 110 \rangle$  car c'est le plus « ouvert », c'est-à-dire qu'à la fois la surface du canal est la plus grande et la densité d'atomes le long des rangées est la plus importante ( $d_{\langle 110 \rangle}=4,00 \text{ \AA}$ ) : on obtiendra ainsi une grande différence de dépôt d'énergie entre les ions bien canalisés qui voyagent loin des rangées, et les ions mal canalisés qui subissent des collisions proches le long des rangées.

La Figure 2-5 schématise la structure cubique face centrée type diamant d'un cristal de germanium. La surface de la cible est un plan (100). Les axes  $\langle 110 \rangle$  font un angle de  $45^\circ$  avec la normale au plan (100).

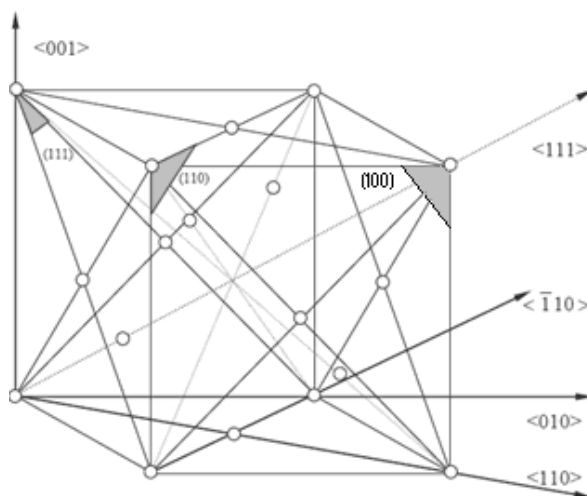


Figure 2-5 : structure cubique face centrée type diamant d'un cristal de germanium

### 3) Caractérisation de la cible

#### *a. Mesure de l'épaisseur du cristal*

La mesure de l'épaisseur de la cible a été faite par mesure de la perte d'énergie de particules alpha traversant la cible. Les particules alpha sont fournies par une source d'américium 241. La comparaison de cette perte d'énergie avec la valeur fournie par le code de calcul TRIM, basée sur la formule de Bethe de perte d'énergie par unité de longueur ( $dE/dx$ ) des ions dans la matière, permet de déduire l'épaisseur de la cible à 0,05  $\mu\text{m}$  près. La mesure de l'épaisseur du cristal de germanium a donné la valeur de 0,61  $\mu\text{m}$ .

#### *b. Caractérisation de la surface*

La surface d'un cristal correspond à une discontinuité dans l'arrangement périodique des atomes en volume, ce qui modifie localement les propriétés liées à cet arrangement. Si l'on considère un atome situé en surface, il possède un nombre de voisins inférieur à celui qu'il posséderait s'il était au cœur de l'édifice cristallin. Il en résulte que cet atome aura tendance à échanger des liaisons plus fortes avec les atomes sous-jacents, et également à contracter de nouvelles liaisons avec les atomes ou les molécules du milieu environnant, de façon à rétablir l'équilibre du champ de forces auquel il est soumis. Les atomes de surface sont donc très réactifs. En conséquence, si le cristal est en interface avec l'air, on aura des impuretés déposées en surface. En général, les impuretés sont principalement dues à l'oxydation ( $\text{GeO}_2$ ). Mais on peut aussi avoir des dépôts hydrogénés (eau) ou carbonés suivant la nature du gaz résiduel dans la chambre de collision.

Dans notre cas particulier, une source importante de pollution provient des huiles de pompe et des graisses de lubrification des pièces mécaniques. Donc, il y a une possibilité que les huiles viennent se déposer en surface, si leur pression saturante est supérieure ou égale à la pression dans la chambre de collision.

Dans les expériences de pulvérisation, les rendements d'émission ionique sont très sensibles aux impuretés en surface. En effet, les ions venant du volume de la cible (zone proche de la surface) peuvent être d'une part arrêtés par les couches d'impuretés s'ils n'ont pas l'énergie cinétique suffisante, et, d'autre part, comme ils sont en majorité chargés une seule fois, ils peuvent être neutralisés en traversant la couche d'impureté.

Alors pour limiter l'influence des impuretés, on nettoie la surface autant que possible.

#### **(i) L'expérience de pulvérisation ionique « test ».**

Nous avons fait cette expérience au GANIL dans la salle SME (la Sortie Moyenne Energie) quelques mois avant l'expérience finale pour tester l'ensemble des détecteurs et le système d'acquisition.

Nous avons utilisé un faisceau d'ions  $\text{Kr}^{31+}$  de 10 MeV/u, et, comme cible, dans un premier temps, un cristal de germanium d'épaisseur 1  $\mu\text{m}$ , pour regarder les espèces émises depuis la surface. Puis, dans un deuxième temps, nous avons remplacé le germanium par une feuille d'aluminium d'épaisseur 12  $\mu\text{m}$  pour faire la comparaison entre les spectres d'ions émis dans les deux cas. Le taux de perte d'énergie électronique  $S_e$  des ions  $\text{Kr}^{31+}$  de 10 MeV/u est de 14 keV/nm dans le Ge et de 10,4 keV/nm dans l'Al.

Le cristal de germanium et la feuille d'aluminium étaient conservés, jusqu'au moment de l'expérience, sous pression atmosphérique sans précaution particulière.

Les ions émis en surface ont été identifiés, par identification de leur masse en utilisant le LAG (Chapitre 2 :B -II. 4)). La Figure 2-6 schématise le principe de l'expérience. Le faisceau passe à travers une première feuille d'aluminium. En face de cette feuille, il y a un détecteur à électrons formé de deux galettes à microcanaux, dont la face d'entrée est polarisée à 200 V environ, et l'anode à 2,2kV. Ce détecteur délivre le signal Start de l'expérience lors d'un passage d'un ion.

Après, le faisceau incident rentre dans la cible polarisée à +8kV. Les ions positifs émis en surface sont extraits par la grille qui se trouve devant la cible. Puis ils rentrent dans le tube à dérive avant qu'ils soient détectés par le détecteur du spectromètre à temps de vol, le LAG.

A chaque ion détecté par le LAG correspond un signal Stop. La différence en temps entre le signal Start et le signal Stop donne le temps de vol de l'ion détecté, qui permet de déterminer sa masse.

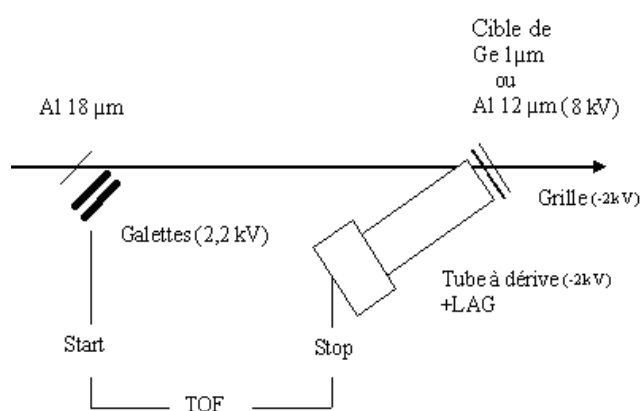


Figure 2-6 : représentation schématique du dispositif de détection des ions secondaires positifs émis en surface de la cible.

Les spectres suivants ont été obtenus en sommant les 64 voies du LAG

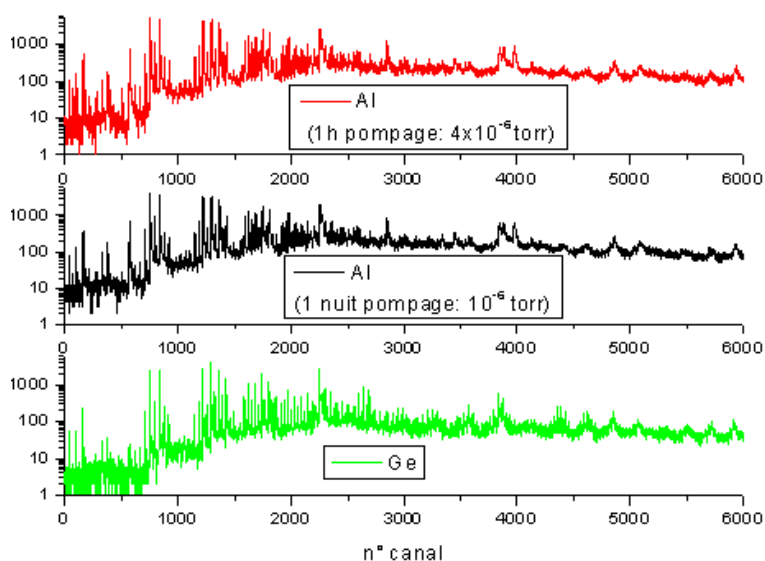


Figure 2-7 : spectres normalisés des ions positifs émis en surface. a) et b) la cible est la feuille d'aluminium et la différence entre les deux cas est la durée du pompage avant l'irradiation. c) la cible est le cristal de germanium.

La Figure 2-7 présente trois spectres bruts, normalisés à un même nombre d'ions incidents, du temps de vol des ions positifs émis par la surface. Le temps est exprimé en numéro du canal fourni par le convertisseur temps-numérique du LAG (1 canal=0,6ns).

Dans le cas de l'aluminium, l'augmentation de la durée du pompage diminue légèrement le bruit de fond, ce qui montre qu'une partie des impuretés à la surface s'évapore avec le temps dans un vide secondaire.

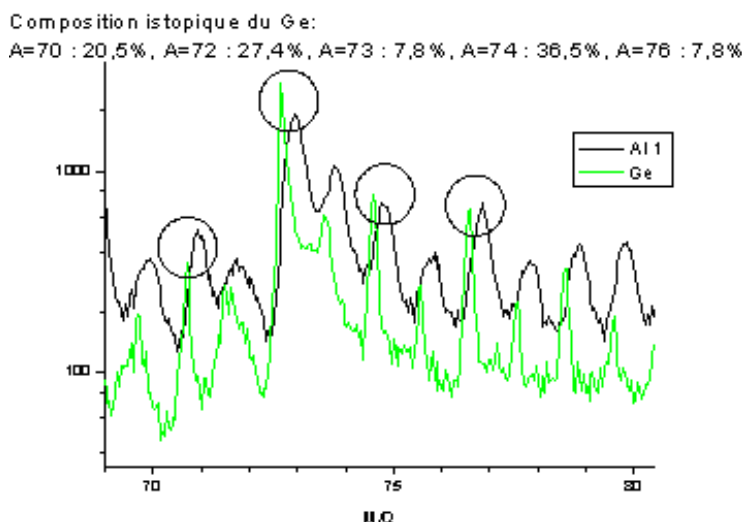


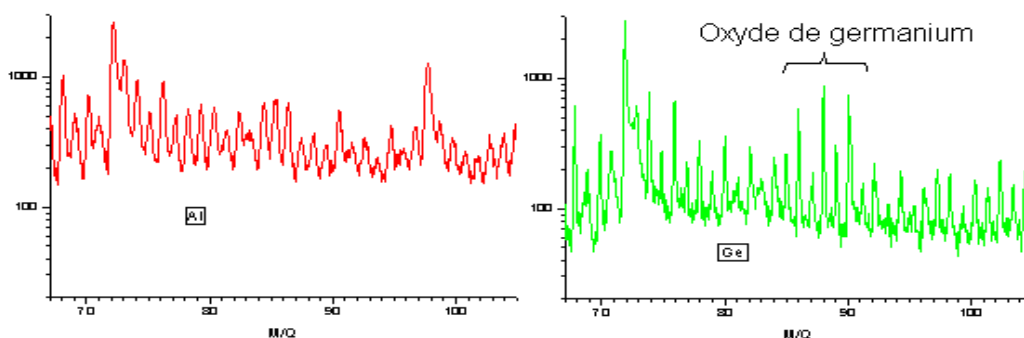
Figure 2-8 : spectres calibrés en masse des ions positifs émis dans la région des masses des isotopes du germanium.

Nos spectres ont été calibrés en supposant une loi suivante :

$$n^{\circ} \text{ canal} = a * (m/q)^{1/2} + b.$$

L'absence de pic de référence, due au peu de différence nette entre les cibles Al et Ge, rend cette calibration incertaine. De plus la résolution obtenue pour le spectre de masse avec la cible d'aluminium était très mauvaise, ce qui ne facilite pas la comparaison. Dans la région des masses du germanium (Figure 2-8), on obtient les distributions de masses indiquées, avec les incertitudes sur la calibration. On ne retrouve pas la distribution isotopique du germanium (en haut de la Figure 2-8), et il est possible que les isotopes importants (70,72 et 74) apparaissent, avec éventuellement un groupement  $(\text{GeH})^+$ .

En comparant les deux spectres (Ge et Al), on remarque qu'ils sont semblables. Ceci montre que la quantité d'ions  $\text{Ge}^+$  est très faible et que les spectres sont dominés par les impuretés en surface.



**Figure 2-9 : spectres calibrés en masse des ions positifs émis dans la région des masses des isotopes de l'oxyde de germanium.**

En comparant le spectre Al et le spectre Ge vers les masses 86 (Figure 2-9), on trouve une série de pics, dans le cas de Ge, qui se rapproche de la distribution isotopique des masses de Ge. On a attribué ces pics à l'oxyde de germanium ( $\text{GeO}^+$ ).

Les ions positifs d'oxyde de germanium ont pu sortir plus facilement que le germanium tout seul, puisqu'ils existent en surface. (On revient sur ce point dans le chapitre d'analyse).

La principale conclusion de ces tests est que l'environnement n'est pas favorable à l'observation de l'émission ionique. Le responsable est probablement le goniomètre utilisé pour les expériences de canalisation. Ses moteurs sont à l'intérieur de la chambre, et sont lubrifiés avec une graisse à faible pression de vapeur saturante. La présence d'ions Dyméthylphthalate (Figure 2-7, autour du canal 4000,  $M=147-149$  u.m.a) est caractéristique des graisses siliconées.

En conséquence, pour l'expérience finale, nous avons décidé d'utiliser un goniomètre conçu à l'IPNL, dont les moteurs sont à l'extérieur de la chambre.

#### **(ii) Les différents tests de nettoyage et de caractérisation.**

L'expérience « Test » faite en SME au GANIL avec des ions Kr avait fait apparaître la présence de nombreuses impuretés en surface des cristaux de germanium. Ensuite, des tests de nettoyage et de caractérisation ont été entrepris aux accélérateurs Van de Graaff 2 MeV de l'INSP (Jussieu, Paris) et au Van de Graaff 2,5MeV de l'IPN de Lyon.

- Les tests de nettoyage et de dosage au Van de Graaff de Jussieu-Paris

Il s'agit d'un dosage de l'oxygène et du carbone par la réaction nucléaire (d,p) (deutons de 857 keV et de 968 keV respectivement). La section efficace pour C(d,p) est 4,95 fois plus grande que celle de  $\text{O}^{16}(\text{d,p})\text{O}^{17*}$  de sorte qu'une seule cible référence d'oxygène suffit ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$  sur Ta,  $699 \times 10^{15}$  oxygène/cm<sup>2</sup>).

Nous avons fait le dosage pour le cristal utilisé lors de l'expérience « Test » sans lui faire subir de traitement de nettoyage. Nous avons trouvé en surface  $14,5 \cdot 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> d'oxygène et  $6,6 \cdot 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> de carbone.

Pour enlever l'oxygène en surface, nous avons utilisé de l'acide fluorhydrique (HF) (à 5%) pendant 3 minutes, suivi d'un rinçage avec de l'eau désionisée  $\text{H}_2\text{O}_2$  (à 30%) pendant 30 secondes [43]. Alors la quantité d'oxygène est passée de  $14,5 \cdot 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup> à  $5,9 \cdot 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup>.

Pour le carbone, nous avons utilisé de l'acétone avec du trichloréthylène et de l'eau désionisée. Mais nous n'avons pas trouvé de changement significatif. Alors, on a essayé une autre solution : le même cristal a été mis pendant 2h à 600°C en présence d'oxygène à la pression de 0,2 atmosphère. Le but était d'obtenir la combustion du carbone, avec vaporisation sous forme de  $\text{CO}_2$ . Cet échantillon s'est déchiré pendant l'opération. Cependant nous avons quand même pu effectuer le dosage sur la partie épaisse du cristal (là où il y a le substrat de silicium). L'échantillon a subi peu avant le dosage le même traitement chimique, c'est-à-dire HF puis rinçage à l'eau désionisée pour enlever la couche d'oxyde formée.

Voici les résultats: il y a nettement moins de carbone que lors de la mesure précédente  $2,7 \cdot 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup>, et l'oxygène a baissé un petit peu jusqu'à  $4,9 \cdot 10^{15}$  at/cm<sup>2</sup>. Cependant, l'aspect du cristal était très noirci, et cela ne nous a pas encouragé à réitérer ce type de traitement.

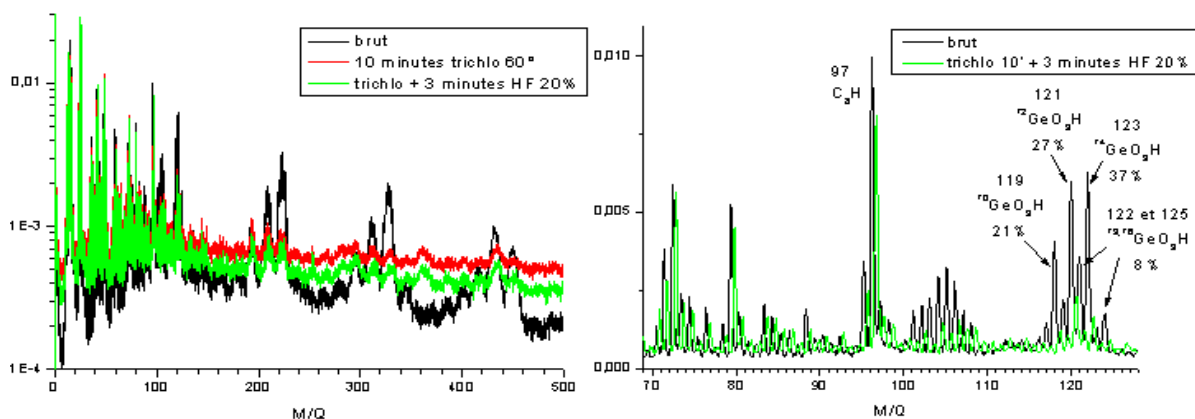
- Les tests de nettoyage et de caractérisation avec les agrégats d'or au Van de Graaff de Lyon.

Nous avons réalisé d'autres « nettoyages » à l'IPNL, en particulier avec du trichloréthylène, puis des mesures d'émission ionique sous impact d'agrégats Au<sub>9</sub><sup>+</sup> de 500 keV. Ces projectiles ont l'avantage de provoquer une forte pulvérisation [9, 15], incluant des molécules et agrégats de grande taille. Le taux de perte d'énergie électronique S<sub>e</sub> est de 3 keV/nm et le taux de perte d'énergie nucléaire (élastique) est de 32,4 keV/nm.

Cette méthode ne permet pas un dosage quantitatif.

Nous avons regardé l'émission d'ions négatifs (temps de vol déclenché par les électrons sur le même détecteur que pour les ions).

Nous avons utilisé des fragments d'une cible préalablement recuite 4h à 600°C puis conservée dans sa boîte sans précautions particulières (il s'agit ici de la partie épaisse d'une cible Si-Ge, côté Ge). Dans un premier temps nous avons regardé l'effet d'un nettoyage au trichloréthylène à chaud (10 minutes), avec et sans nettoyage supplémentaire avec du HF (3 minutes dans une solution à 20%). Les spectres de masse de la figure 10 sont obtenus avec un cristal brut, un cristal traité au trichloréthylène seul et un troisième traité au trichloréthylène puis à l'éthanol et enfin au HF.



**Figure 2-10 : a-spectre de masse (en unités atomiques) des ions négatifs émis en surface de trois fragments d'un même cristal de germanium traités en surface différemment. b-zoom sur une région de masse 70-130 pour le premier et le troisième spectre (voir texte).**

Dans le spectre brut (Figure 2-10) figurent des séries de pics vers les masses 105, 120, puis 195, 210, 225, puis 290,... Il s'agit de groupements (GeO<sub>n</sub>H<sub>m</sub>)<sub>x</sub>, ce qui montre que ces composés massifs en surface sont des oxydes de Ge et pas seulement des composés carbonés (graisses). Assez curieusement le trichloréthylène supprime ces composés, et en rajoute d'autres vers 250, 360 (le bruit de fond était plus mauvais sur les échantillons traités). Le traitement supplémentaire avec HF n'a pas un effet remarquable ici (une petite diminution de 20% environ des pics O et OH).

La seconde figure est un zoom sur la région des masses 70-130. La région des Ge et GeH est polluée par les  $C_6H_n$ , et on ne trouve pas les répartitions isotopiques du Ge. La région des  $GeO_2H$  ( $m=100-110$ ) est également polluée par d'autres contaminants. Par contre on est très près de la répartition isotopique du Ge dans la région des masses 120 avec  $GeO_3H$  (voir figure), avec certainement une contribution résiduelle du  $C_{10}$  et  $C_{10}H$  vers  $m=120-121$ . Le traitement au trichloréthylène fait disparaître cette répartition isotopique.

D'autres traitements plus ou moins longs au trichloréthylène (30 minutes et 3 minutes) ne font pas apparaître d'évolution très sensible, si ce n'est une augmentation avec le temps de pics associés au chlore ( $m\sim 35, 70$ ).

On privilégiera en conséquence un nettoyage HF qui a fait ses preuves au Van de Graaff de Jussieu-Paris.

L'autre conclusion de ces mesures est que le temps passé par les cibles dans un vide assez propre améliore l'état de surface. On a constaté que la concentration en  $C_n$ ,  $C_nH$ , diminue sensiblement après une semaine sous vide.

Le traitement choisi pour le cristal de germanium pour l'expérience principale a donc été le suivant :

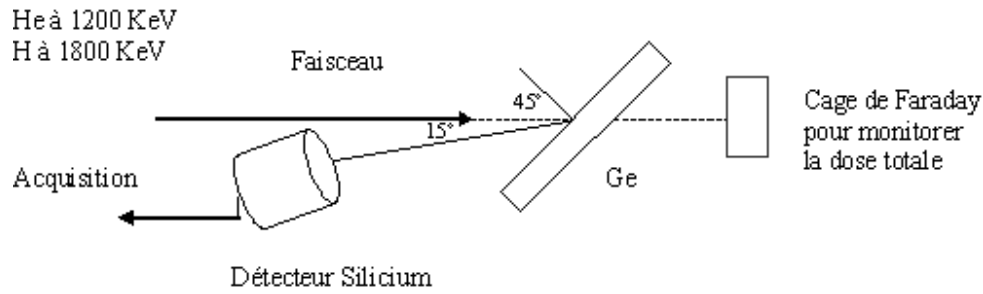
- nettoyage avec un solvant non chloré (acétone-alcool éthylique) pendant 1 minute
- rinçage à l'eau distillée
- suppression de l'oxyde avec HF 10 à 20% pendant 3 minutes
- rinçage à l'eau distillée
- séchage sous jet d'azote
- stockage sous vide secondaire avec pompe primaire sèche

Un point en suspens est la méconnaissance de la nature du dépôt de carbone en surface : est-il en amas ou réparti uniformément ? Une mesure de spectrométrie Auger aurait permis de répondre en comparant O et C. Cependant cette mesure aurait été difficile à mettre en œuvre avant l'expérience.

- Les caractérisations faites après l'expérience sur le cristal de germanium

Pendant l'expérience principale au GANIL, on a eu l'impression d'un « mauvais état » en ce qui concerne la qualité cristalline de notre cristal de Ge (nombre d'ions gelés dans leur état de charge initial trop faible). Pour mesurer cela après coup, on a fait une expérience au Van de Graff de Jussieu pour tester le cristal par la méthode RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) [11].





**Figure 2-11 : représentation schématique du dispositif expérimental utilisé en RBS**

La Figure 2-11 montre le principe de cette expérience. Nous avons mesuré le nombre de projectiles rétrodiffusés (H,He), dans le cas où le faisceau est aligné suivant l'axe  $\langle 110 \rangle$  du cristal de Ge utilisé dans l'expérience principale (Figure 2-12), et dans le cas d'une direction aléatoire par rapport au cristal Ge/Si, formé d'une couche de Ge (de même épaisseur que notre cristal) déposée sur une couche épaisse de Si (Figure 2-13).

A chaque direction de diffusion du projectile  $\theta$  correspond un transfert d'énergie cinétique vers l'atome cible, celui ci peut être calculé en appliquant les règles de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie lors de la collision.

Ce transfert d'énergie est généralement désigné comme le facteur cinétique K, lequel correspond au rapport entre l'énergie du projectile après la collision ( $E_1$ ) et son énergie initial ( $E_0$ ).

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[ \frac{M_1 \cos \theta \pm \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta}}{M_1 + M_2} \right]^2$$

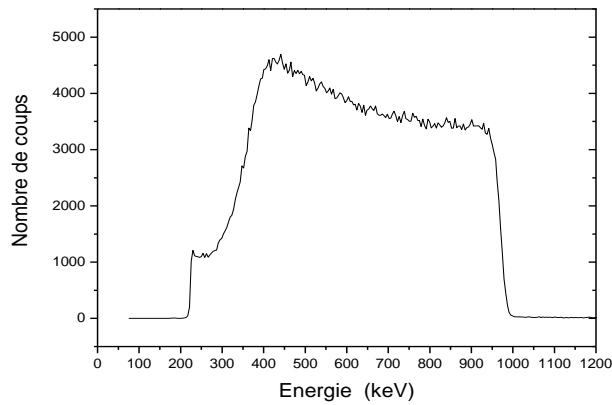
$M_1$  : est la masse du projectile (H, He).

$M_2$  : est la masse de l'atome cible (ici Ge)=72,6 unités atomiques.

Pour  $\theta = 165^\circ$  on a  $K_{He \rightarrow Ge}(165^\circ) = 0,81$  et  $K_{H \rightarrow Ge}(165^\circ) = 0,947$ .

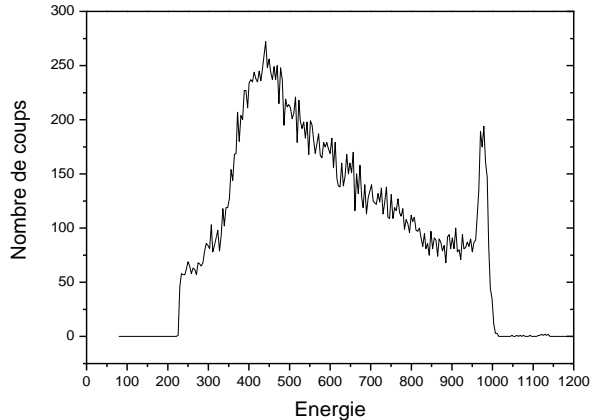
Au total, la perte d'énergie du projectile rétrodiffusé résulte de la perte d'énergie électronique dans le milieu (sur les électrons du milieu) et du transfert d'énergie lors de la diffusion sur l'atome de la cible. Plus l'atome diffuseur est proche de la surface, plus la perte d'énergie totale est faible. En particulier, les projectiles diffusés sur les atomes de surface ont la plus faible perte d'énergie, et constitue dans le spectre RBS ce qu'on appelle le pic de surface.

Dans la suite, on montre des spectres RBS (Figure 2-12, Figure 2-13) obtenus dans cette expérience pour le faisceau d'ions He seulement.



**Figure 2-12 : spectre en énergie des ions He (1200 keV) rétrodiffusés à 165° sur un cristal Ge/Si dans le cas d'une orientation quelconque.**

Dans cette figure, on voit le spectre des ions He rétrodiffusés à 165° dans le cas d'une orientation quelconque. Sur les grandes énergies, on a la rétrodiffusion des ions incidents sur les atomes de la surface du Ge, et vers les basses énergies, on observe bien la redescente du spectre correspondant à la face arrière du cristal de germanium. On remarque que le taux de rétrodiffusion avec la profondeur, c.à.d. lorsque l'énergie diminue, augmente puisque la section efficace de Rutherford est inversement proportionnelle à l'énergie.



**Figure 2-13 : spectre en énergie des ions He (1200 keV) rétrodiffusés à 165° sur notre cristal de Ge dans le cas d'un alignement axial.**

Dans cette figure, on voit le spectre des ions He rétrodiffusés à 165° dans le cas de l'alignement axial  $\langle 110 \rangle$  du cristal de Ge.

On a d'abord le pic de surface, qui résulte de la rétrodiffusion des ions sur les premières couches d'atomes ; puis le rendement diminue brusquement mais ne s'annule pas puisqu'il reste une partie du faisceau qui n'est pas canalisé. Enfin une fraction des ions qui progressent dans le cristal se décanalisent à cause de la diffusion multiple sur les électrons et sur les noyaux qui augmente leur énergie transverse. C'est pourquoi l'augmentation du taux

de rétrodiffusion en fonction de la profondeur est supérieure à celle qui est observée pour une orientation quelconque.

Une grandeur physique importante dans ces études est le rapport  $\chi_{\min}$ , qui est égal au rapport du nombre de projectiles rétrodiffusés dans le cas d'alignement axial pour une dose donnée (un nombre de projectiles incidents donné), sur le nombre de projectiles rétrodiffusés dans le cas d'une orientation quelconque pour la même dose.

On a trouvé que dans le cas du faisceau d'ions He incident, ce rapport est 4,3% si on intègre l'épaisseur totale du cristal, et 2,5% si on prend seulement le rapport des rendements juste sous le pic de surface (vers 900 keV).

Ces valeurs montrent que la qualité cristalline est très bonne sur toute l'épaisseur du cristal.

## **4) Orientation du cristal**

### ***a. Le goniomètre***

Pour orienter le cristal, nous avons utilisé un goniomètre conçu à l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon. Il a deux mouvements de rotation autour de deux axes perpendiculaires. Ces 2 mouvements sont assurés par des moteurs pas-à-pas pilotables à distance :

- Le mouvement d'inclinaison autour de l'axe horizontal perpendiculaire à la direction du faisceau,

- Le mouvement de rotation autour de l'axe vertical.

La précision relative des mouvements angulaires est de l'ordre de  $10^{-3}$  degré.

De plus le goniomètre a un mouvement manuel de translation dans la direction verticale, qui permet d'escamoter ou de recentrer le cristal, et deux mouvements de translation horizontale; ces mouvements ont une précision de 2,5  $\mu\text{m}$ .

### ***b. Détermination de la position de l'axe <110> dans notre expérience***

Au départ, le cristal est vertical (inclinaison  $0^\circ$ ). Il est incliné à  $45^\circ$  par rapport à la direction du faisceau incident. De cette façon l'axe <110> est à peu près parallèle au faisceau.

Pour repérer les positions du cristal correspondant à un alignement planaire ou axial, on utilise la propriété qu'ont les ions bien canalisés de conserver leur état de charge (Chapitre 1 :C -II. 1)). Avec un faisceau incident  $\text{Pb}^{56+}$  de 29 MeV/u, nous avons mesuré dans SPEG le nombre d'ions gelés dans leur état de charge initial. Lorsque le cristal est aligné le long d'un plan ou un axe, cette fraction est non nulle, contrairement à ce qui se passe pour une orientation quelconque. La normalisation est effectuée à l'aide de la galette à microcanaux, qui compte les ions incidents au moyen des électrons secondaires, avec une efficacité de 100%.

Nous avons effectué des balayages angulaires en rotation et en inclinaison.

La Figure 2-14 représente la position des plans rencontrés en fonction de l'angle d'inclinaison (axe des ordonnées) et de l'angle de rotation (axe des abscisses).

Chaque point sur cette figure correspond aux coordonnées de la position du cristal pour laquelle on a un maximum local du nombre d'ions gelés transmis. Ces points correspondent donc aux positions du cristal pour lesquelles le faisceau incident est aligné suivant un plan.

L'intersection des plans donne la position de l'axe  $\langle 110 \rangle$ .

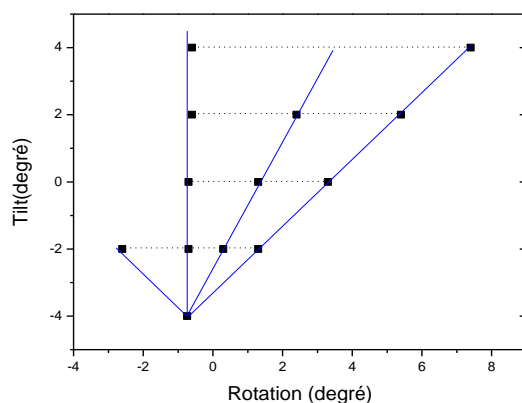


Figure 2-14 : Les points représentent la position repérée de plans en fonction de l'angle d'inclinaison et de l'angle de rotation au cours d'explorations angulaires repérées par les lignes en pointillés.

## II. Le système de détection des ions secondaires

La détection des ions secondaires se fait par spectrométrie de masse : accélération électrostatique et vol libre, de telle sorte que le temps de vol mesuré ( $T_{\text{stop}} - T_{\text{start}}$ ), caractérise le rapport (masse/charge) des ions émis. La Figure 2-15 schématise le système de détection des ions secondaires (voir le commentaire de la Figure 2-4).

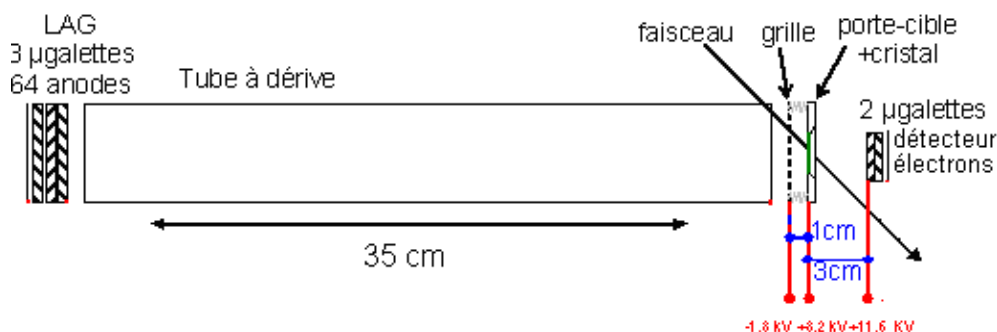


Figure 2-15 : Schéma général du système de détection des ions secondaires

### 1) Le signal Start : détection des électrons secondaires

Les ions traversant le cristal provoquent l'émission d'électrons secondaires depuis chacune de ses surfaces. La Figure 2-16 montre la multiplicité ou le rendement d'électrons

émis de la face arrière du cristal de silicium, dans le cas où le cristal présente au faisceau une direction quelconque, en fonction de la charge à la sortie du cristal.

D'après les résultats présentés sur ce graphe, on aura toujours de l'émission d'électrons secondaires de la face arrière de notre cristal de Ge, puisque le rendement est supérieur à 100.

Cette étude, réalisée par la même collaboration quelques années auparavant [3] avait mis en évidence une variation de ces rendements en condition de canalisation. Cependant les variations portaient sur des diminutions d'un facteur 2 typiquement.

Cela signifie que, pour chaque ion traversant la cible et quelle que soit l'orientation du cristal, un nombre important d'électrons atteignent le détecteur à électrons après avoir été accélérés. Enfin, l'efficacité de la galette à microcanaux qui détecte les électrons étant de l'ordre de 60%, on est sûr d'avoir un signal Start pour chaque projectile traversant la cible.

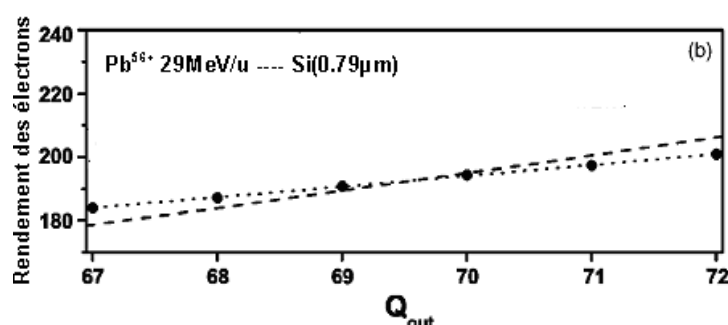


Figure 2-16 : rendement des électrons émis de la face arrière d'un cristal de silicium pour une direction quelconque d'un faisceau d'ions  $Pb^{56+}$  de 29 MeV/u [3].

La Figure 2-17 montre un spectre en énergie des électrons secondaires émis en face d'entrée, sous l'impact d'un faisceau  $O^{5+}$  de 30 MeV sur un cristal de silicium en condition de canalisation dans l'axe  $\langle 110 \rangle$ , et dans le cas d'une orientation aléatoire [29]. Le nombre d'électrons émis décroît avec leur énergie. On désigne les électrons de grande énergie par les électrons  $\delta$ . L'énergie de ces électrons résulte d'une collision violente ou frontale avec un ion incident.

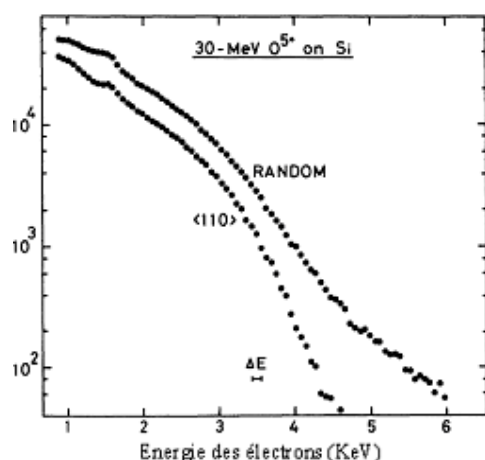


Figure 2-17 : spectre en énergie des électrons secondaires induits, en face d'entrée de cible à  $180^\circ$ , par un faisceau d'ions  $O^{5+}$  de 30 MeV aligné suivant l'axe  $\langle 110 \rangle$  d'un cristal de Si et suivant une direction quelconque [29].

Pour une énergie donnée, le nombre d'électrons émis est plus grand dans le cas où le faisceau est suivant une direction aléatoire que dans le cas d'alignement axial. Cela est dû au fait que les ions canalisés rencontrent en moyenne une densité électronique plus faible.

Supposons que l'efficacité de détection de la galette du détecteur à électron soit 100%. Pour avoir un signal Start, il faut qu'au moins un électron atteigne la galette. Ainsi, le premier électron qui arrive va déclencher le détecteur.

Si l'énergie acquise par les électrons pendant la phase d'accélération est nettement plus grande que l'énergie initiale des électrons  $\delta$ , et si le temps nécessaire à l'accélération des électrons est faible, alors tous les électrons arrivent à peu près en même temps sur le détecteur. Dans ce cas, il n'y aura pas de variation de la référence en temps (qui est définie comme étant le temps de déclenchement du détecteur à électron).

Dans notre expérience,  $E_{\max}(\delta) = 63 \text{ keV à } 29 \text{ MeV/u}$  et  $14 \text{ keV à } 6,5 \text{ MeV/u}$ , et l'énergie acquise par les électrons pendant l'accélération est  $2 \text{ keV}$ . Puisque l'émission d'électrons avec une faible énergie est dominante (Figure 2-17), alors il pourra y avoir un déclenchement du détecteur avec ces électrons lents s'il n'y a pas d'électrons  $\delta$ , ce qui peut introduire une variation sur la référence en temps.

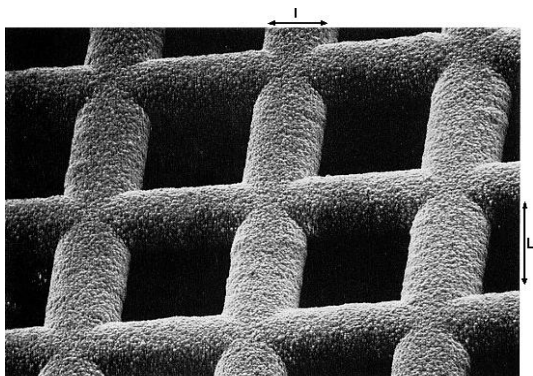
On peut estimer cette variation en prenant, par exemple, un électron  $\delta$  d'énergie  $10 \text{ keV}$ , et un électron avec une très faible énergie initiale. Le temps mis par l'électron  $\delta$  pour parcourir la distance de  $3 \text{ cm}$  (distance entre le cristal et le détecteur à électrons), est  $0,5 \text{ ns}$ , et pour un électron d'énergie initiale très faible, ce temps est de  $2,2 \text{ ns}$ . Donc la différence de temps est typiquement  $1,7 \text{ ns}$ , ce qui n'est pas négligeable devant la résolution temporelle du système de mesure du temps de vol.

Cette différence augmente à haute énergie (environ  $2 \text{ ns à } 29 \text{ MeV/u}$ ) par rapport à la basse énergie (environ  $1,7 \text{ ns à } 6,5 \text{ MeV/u}$ ), parce que les électrons  $\delta$  sont alors plus énergétiques.

De plus, nous verrons au chapitre suivant que ce problème dépend également de l'énergie transverse des ions en condition de canalisation : en effet, les ions bien canalisés rencontrent des densités électroniques plus faibles que les ions mal canalisés, ce qui réduit leur probabilité d'émettre des électrons  $\delta$ ; la référence en temps peut donc se retrouver biaisée.

## 2) La grille

Les ions secondaires émis sont accélérés par le champ électrique résultant de la différence de potentiel entre la cible et la grille. La grille utilisée dans notre expérience est formée de fils en nickel de diamètre  $25 \text{ }\mu\text{m}$ , avec un maillage qui représente 15% de sa surface. La Figure 2-18 montre une image par microscope optique d'une grille similaire à celle qu'on a utilisée pendant notre expérience.



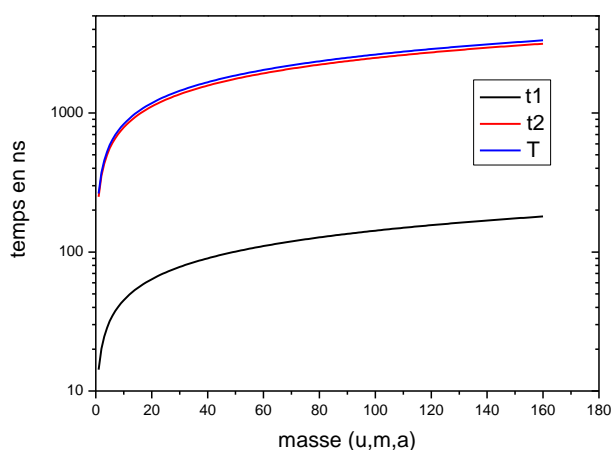
**Figure 2-18 : Image par microscope optique d'une grille similaire à celle de l'expérience. Dans notre expérience  $l=25\mu\text{m}$  et  $L=300\mu\text{m}$ .**

Les ions incidents qui touchent la grille (15% du faisceau incident) sont générateurs d'événements indésirables et donc à supprimer. En effet, à la sortie de la grille, on a des émissions d'électrons secondaires qui vont être accélérés par la différence de potentiel entre la grille et le cristal. Sous l'impact de ces électrons avec la surface il y aura une contribution à la pulvérisation. Ceci va augmenter la multiplicité des ions secondaires émis par l'ion incident. De plus, l'épaisseur traversée par les ions incidents qui rentrent dans la grille varie entre 0 et  $25\mu\text{m}$ , puisque les fils sont cylindriques. Alors l'énergie et l'état de charge de ces ions qui arrivent sur le cristal sont mal définis.

### 3) Le temps de vol des ions

Le temps de vol  $T$  d'un ion est égal à la somme du temps d'accélération  $t_1$  sur la distance  $d_0$  entre la cible et la grille (différence de potentiel  $V_0$ ), et du temps de vol libre  $t_2$  sur la distance  $L$  à l'intérieur du tube à dérive. On néglige dans cette partie le temps mis par les électrons pour parcourir la distance entre la face sortie du cristal et le détecteur à électrons.

Le temps  $t_1 = \left(\frac{2m}{qe}\right)^{1/2} \frac{d_0}{V_0^{1/2}}$  est très petit devant le temps  $t_2 = \left(\frac{m}{2qe}\right)^{1/2} \frac{L}{V_0^{1/2}}$  car la distance  $d_0$  est très petite (1cm) comparée à la distance de vol  $L$  (35 cm).



**Figure 2-19 : la variation du temps de vol en fonction de la masse, pour une accélération de 10 kV sur 1 cm et un vol libre de 35 cm.**

La Figure 2-19 montre la variation du temps de vol en fonction de la masse. La majorité des ions émis sont une seule fois chargés. Les graphes de cette figure sont obtenus en traçant les formules donnant  $t_1$  et  $t_2$  et  $T=t_1+t_2$  pour  $q=1$ .

#### **4) LAG**

Le LAG est un détecteur à localisation à multi anode [7, 8]. Il permet de détecter plusieurs ions qui arrivent simultanément si leurs points d'impact sur le détecteur sont séparés d'au moins la dimension des anodes (pixels). Cela nous permet d'estimer le nombre d'émission d'une espèce donnée.

Le LAG permet aussi de déterminer la distribution spatiale des ions secondaires qui nous permet de remonter à leur énergie d'éjection initiale de la surface.

Ce détecteur est basé sur l'emploi de deux galettes de micro-canaux associées à 64 anodes, chaque anode étant connectée à sa propre chaîne électronique de détection (discriminateur + convertisseur temps-numérique). L'ensemble est équivalent à 64 détecteurs indépendants.

##### ***a. Caractéristiques physiques des Galettes à micro-canaux et de la Multi anode***

Chaque galette à micro-canaux est formée de capillaires en verre de diamètre 12  $\mu\text{m}$  avec un angle de  $8^\circ$  avec la normale à la surface et de longueur de 480  $\mu\text{m}$ . Le rapport de la somme des surfaces des pores sur la surface totale de la galette est à peu près 0,65. Si on applique une tension entre les deux faces de la galette, les électrons secondaires émis par l'impact d'une particule sur la galette sont accélérés et leur nombre est amplifié à l'intérieur des canaux. Pour un potentiel de 1kV appliqué entre la face d'entrée et la face de sortie de la galette, le gain est de l'ordre de  $10^4$ .

Notre détecteur est formé d'un empilement de deux galettes de micro-canaux placées en chevron pour éviter un effet de canalisation des électrons à l'intérieur des canaux. Dans notre expérience, la tension appliquée entre les bornes de chaque galette est 2kV.

La multi anode est située à 0,8 mm de la galette à micro-canaux. Les anodes (pixels), qui sont en cuivre, ont une dimension de (2,18×2,18 mm<sup>2</sup>). La zone interanode, de largeur 0,36 mm, est composée d'abord d'une zone de 0,12 mm d'isolant, puis d'une grille de la même largeur liée à la masse, et enfin d'une dernière zone isolante de 0,12 mm. Un potentiel est appliqué entre la galette à micro-canaux et la multi anode.

##### ***b. L'efficacité physique de détection***

L'efficacité physique de détection du LAG dépend de l'efficacité de détection de la galette à micro-canaux et de la multi anode.

L'efficacité de détection de la galette est égale au rapport de la surface de l'ensemble des micro-canaux à la surface totale de la galette. Donc l'efficacité géométrique de la galette est  $\varepsilon_1=0,65$ .



A la sortie de la galette, on aura un nuage électronique. L'amplitude correspondant au nombre d'électrons collectés par une anode donnée doit être supérieure au seuil du discriminateur. Dans notre expérience, on a fixé le seuil des discriminateurs du LAG à 5 mV, ce qui est faible et qui sera pratiquement toujours franchi.

Le rapport de la surface des anodes sur la surface totale (pixel + zone inter pixel inactif) est de 0,75, qui définit l'efficacité géométrique des anodes  $\varepsilon_2$ . Mais en réalité, cette efficacité est plus grande que 0,75 à cause de l'extension du nuage électronique. En effet, pour des nuages électroniques d'une extension de 165  $\mu\text{m}$  (valeur rentrée dans les simulations pour reproduire la réponse du détecteur) qui tombent dans la zone inter pixel, il y a une chance qu'un pixel voisin soit touché, ce qui augmente l'efficacité  $\varepsilon_2$ . Il y a aussi une probabilité non nulle aussi de toucher deux pixels voisins à la fois, ce qui conduit à surestimer le nombre exact des impacts incidents, ce qu'on appelle la diaphonie. Cette diaphonie devra être étudiée pour être corrigée.

L'efficacité physique totale de la détection est  $\varepsilon = \varepsilon_1 \times \varepsilon_2$

Pour un nombre d'impacts simultanés inférieur à 10, la probabilité de recouvrement entre les impacts est négligeable, et dans ce cas là (qui est aussi le cas de notre expérience) le fonctionnement du détecteur est normal avec une efficacité totale voisine de 0,5.

Pour un nombre d'impacts simultanés supérieur à 10, la probabilité de recouvrement entre les impacts n'est pas négligeable. Il y aura une sous-estimation du nombre réel d'ions incidents sur le LAG. Par contre une analyse détaillée de l'amplitude du signal permet de se rapprocher de la réalité.

### ***c. L'acquisition des données sur le LAG***

Le convertisseur temps-numérique (CTN), en anglais Time-to-Digital Converter (TDC), permet de mesurer les intervalles de temps séparant les impulsions START des impulsions STOP. Les TDC sont intégrés dans des cartes VME (Versa Module Eurocard).

Chaque TDC a un compteur interne de pas de 0,5ns avec un temps maximal mesurable de 16 $\mu\text{s}$  et une mémoire de capacité 8 mots.

Le signal Start délivré par le détecteur à électrons est pris comme référence temporelle.

Il déclenche la phase d'enregistrement sur la mémoire du TDC. Lorsque le TDC reçoit un signal de discriminateur d'un pixel de LAG, il transmet la valeur de son compteur et il l'enregistre dans la première adresse de sa mémoire Stop1, puis Stop2 dans la deuxième adresse s'il y a un autre signal envoyé par le même discriminateur pendant une certaine fenêtre de temps déclenchée par l'arrivée du signal Start et ainsi de suite pour Stop3....

Le temps mort, entre les signaux Stop successifs sur la même voie pour un même signal Start, est variable. Il dépend du nombre de Stops arrivés. Le second Stop est accepté après 44ns et le troisième Stop après 135ns. Ce temps dépend de la longueur des fils de connexion entre les différents modules électroniques, de la réponse des discriminateurs, de l'enregistrement des différents signaux (la phase de l'écriture) et de la transmission des données (la phase de lecture).

Dans notre cas, les rendements des différentes masses émises sont inférieurs à 1 (comme on va voir au chapitre suivant). Alors la probabilité pour que deux ions émis de même masse arrivent simultanément sur le même pixel est faible.

La différence entre le signal Start et le signal Stop caractérise le temps de vol de l'ion secondaire émis de la surface du cristal par rapport à l'instant d'impact de l'ion incident sur la cible.

#### ***d. La résolution en temps***

Expérimentalement la résolution en temps est déduite de la largeur à mi-hauteur des pics dans le spectre de temps de vol.

Cette résolution dépend de la résolution en temps du discriminateur du LAG convoluée avec celle du détecteur d'électrons, et de celle du TDC (0,5 ns par canal).

En plus de cette résolution temporelle, les pics obtenus sur le spectre de distribution de masse ont une largeur qui dépend de paramètres physiques.

Les principaux facteurs physiques qui influencent la largeur des pics  $\Delta T$  sont:

- la distribution d'énergie initiale des ions secondaires : la distribution de vitesses initiales parallèlement à la direction d'accélération des ions de même masse se traduit par une distribution des temps d'arrivée sur le détecteur, donc par un élargissement du pic de masse ;

- la distribution de vitesse des électrons secondaires : nous avons discuté dans la section II-1 de la dispersion introduite dans la référence en temps de vol par la détection ou non d'électrons  $\delta$ , sachant qu'il y aura toujours un Start associé aux électrons lents, mais pas toujours aux électrons  $\delta$  beaucoup moins nombreux ;

- la fragmentation des ions secondaires : un ion secondaire  $A^+$  de masse  $m$ , formé de plusieurs atomes ou molécules, peut être émis de la surface dans un état excité. Il y a une chance qu'il se désexcite en se fragmentant au moins en deux fragments  $A_1$  et  $A_2$  de masse  $m_1$  et  $m_2$ . Dans ce cas l'un des deux fragments sera chargé positivement et l'autre sera en général neutre. L'influence de la fragmentation sur les pics de spectre de temps de vol dépend du moment de la fragmentation pendant la phase d'accélération.

Si elle se fait au début de l'accélération c.à.d. si  $A_1^+$  est accéléré pendant un temps court comme étant  $A^+$  et pour le reste de la phase d'accélération comme étant  $A_1^+$ , cela provoque un élargissement sur la partie descendante du pic  $A_1^+$  (temps de vol légèrement plus long que pour les ions  $A_1^+$  émis). Dans ce cas là, on perd le deuxième fragment  $A_2$ .

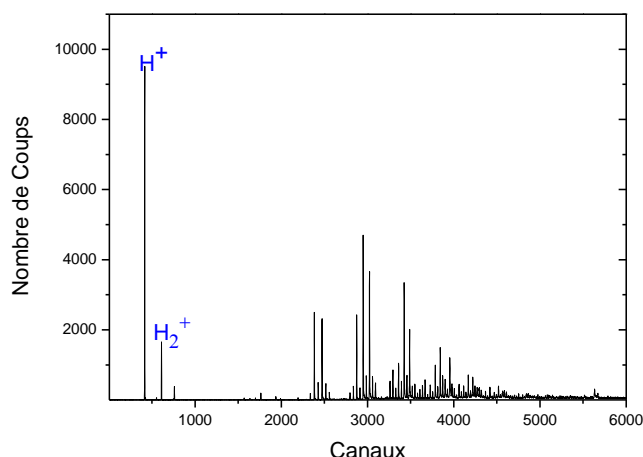
Si elle se fait à la fin de l'accélération c.à.d. si  $A_1^+$  et  $A_2$  sont accélérés pendant la majeure partie du temps comme étant  $A^+$ , alors l'élargissement cette fois se situe sur la partie ascendante du pic  $A^+$  (temps de vol légèrement plus court que pour les ions  $A^+$  émis).

Si elle se fait dans le tube de vol c.à.d. les deux fragments sont accélérés pendant toute la phase de l'accélération comme étant  $A^+$ , dans ce cas là, il n'y a pas d'influence sur la

largeur des pics. Mais on compte deux fois l'ion  $A^+$  si les fragments arrivent sur des pixels séparés.

On peut avoir des spectres de temps de vol pour chaque pixel puisqu'ils sont indépendants, et pour avoir plus de statistique, on peut sommer les spectres de tous les pixels. Mais dans ce dernier cas, la résolution en temps est moins bonne si on ne corrige pas de la calibration de chaque pixel séparément.

### *e. La calibration en masse*



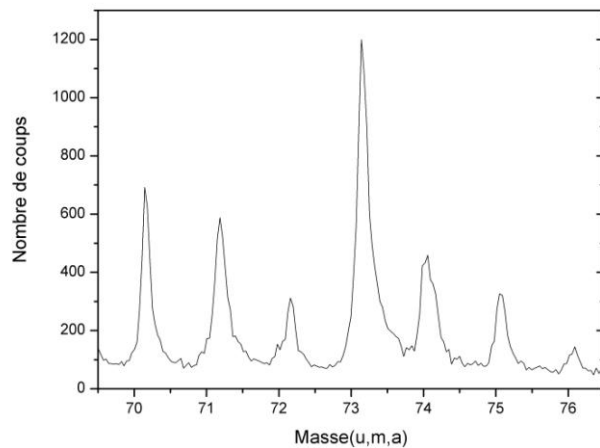
**Figure 2-20 : Spectre de temps de vol typique des ions secondaires détectés**

La Figure 2-20 nous montre un spectre de temps de vol brut donné par le pixel qui a enregistré le plus grand nombre de stops. En axe des ordonnées, on a le nombre d'événements d'ions secondaires détectés, et en axe des abscisses, on a les numéros de canaux. Un canal est un intervalle de temps ajustable. On a choisi la valeur 0,6 ns par canal pour profiter pleinement de la résolution en temps de la détection.

Sur ce spectre on a identifié les pics  $H^+$  et  $H_2^+$  et  $H_3^+$ . Pour identifier les autres masses, on a fait la calibration de ce spectre en masse en utilisant les masses du  $H^+$  et  $H_2^+$ .

En effet, le temps de vol d'un ion donné  $T$  est proportionnelle à la racine carrée de sa masse  $m$  (les ions secondaires émis sont majoritairement chargés une seule fois).

On peut écrire  $T = a\sqrt{m} + b$ . En trouvant  $a$  et  $b$  on peut transformer l'échelle linéaire en temps en échelle non linéaire en masse. La Figure 2-21 présente un spectre en masse dans la région de masse des isotopes de Ge.



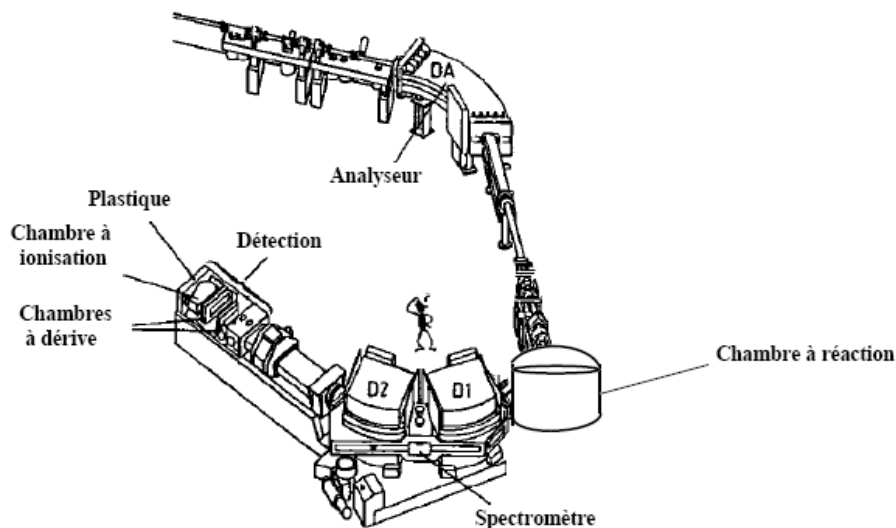
**Figure 2-21 : Région de masse des isotopes de germanium**

Pour le pic de l'ion hydrogène de masse  $=1,007\text{u.m.a}$ , la résolution en temps c.à.d. la largeur à mi-hauteur est de 1,5 ns, ce qui correspond à une résolution en masse  $\Delta m = 0,0084\text{ u.m.a}$ .

Pour déterminer la résolution dans la région de la masse des ions de Ge, on a choisi le pic de la masse 68 u.m.a, qui est bien défini c.à.d. symétrique et sans déformation. La largeur à mi-hauteur est de 1,3 ns ce qui correspond à une résolution en masse  $\Delta m = 0,1\text{u.m.a}$ .

### III. Spectromètre à Perte d'Énergie du GANIL (SPEG)

Le spectromètre SPEG (Spectromètre à Perte d'Énergie du GANIL) est présenté ci-dessous [4]. Il est utilisé dans l'expérience présente pour mesurer la charge et l'énergie des ions incidents traversant la cible. Le spectromètre et les détecteurs du plan focal sont d'abord décrits. Puis les procédures d'étalonnage du spectromètre sont détaillées. L'étalonnage en position des chambres à dérive de ce spectromètre permet de déterminer l'impulsion des particules au niveau du plan focal.



**Figure 2-22 : Vue du spectromètre SPEG**

## 1) Le spectromètre à perte d'énergie

SPEG est composé de deux ensembles magnétiques: l'analyseur et le spectromètre (Figure 2-22). La partie spectromètre située après la cible comprend deux dipôles magnétiques séparés qui sélectionnent les ions transmis selon leur rigidité magnétique:

$$B\rho = \frac{P}{Q} (1)$$

avec  $P$  l'impulsion de la particule et  $Q$  sa charge,  $B$  le champ magnétique appliqué dans l'aimant et  $\rho$  le rayon de courbure du faisceau centré dans l'aimant

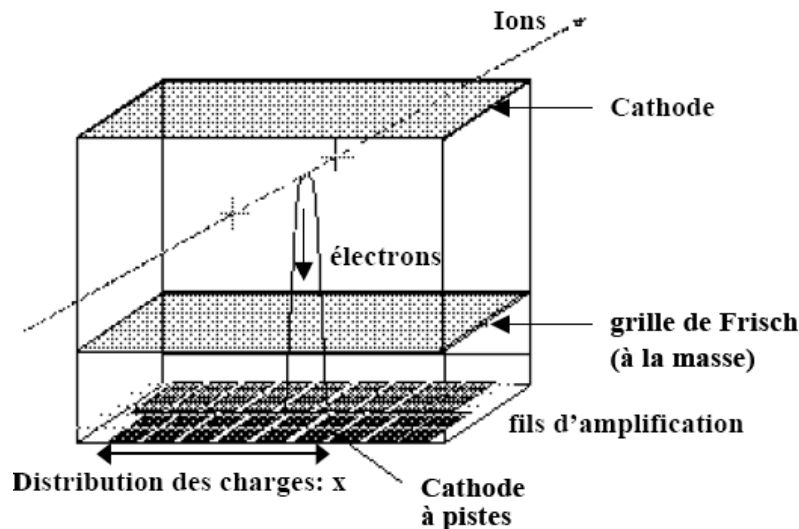
Le spectromètre SPEG couvre un angle solide de 5 msr et bénéficie d'une acceptance en moment ou en distribution de charge de 7%. C'est un spectromètre de haute résolution, qui permet une mesure très précise de l'impulsion des ions transmis. La rigidité magnétique maximale du spectromètre SPEG est 2,7 Tm. Son plan focal est doté d'un système de détection composé de deux chambres à dérive, une chambre d'ionisation et un détecteur plastique, qui permettent d'identifier en masse et en charge les particules diffusés dans le spectromètre et de mesurer leur énergie. La résolution en position est de 0,8mm, ce qui correspond à une résolution de  $10^{-4}$  en impulsion.

Dans notre expérience, on a utilisé une seule chambre à dérive et le détecteur plastique. Le signal délivré par le détecteur plastique déclenche l'acquisition pour la chambre à dérive qui donne la position horizontale des ions transmis dans le plan focal du SPEG.

## 2) La chambre à dérive

La chambre se compose d'une cathode, d'une grille (appelé grille de Frish), de fils d'amplification, d'une cathode à pistes et de préamplificateurs (Figure 2-23). La chambre possède une largeur utile de 70cm pour une hauteur de 10cm. La grille de Frish et la cathode sont distantes de 10cm. Les fils d'amplification sont à 1cm de la grille et à 5 mm de la cathode à pistes. La cathode fonctionne sous une tension de -800 V et la grille de Frish est mise à la masse. La grille de Frish est constituée de 46 fils de pas 2,54 mm et de 100µm de diamètre. Deux feuilles de mylar de 0,9µm sont placées perpendiculairement au faisceau et assurent l'homogénéité du champ entre la grille de Frish et la cathode.

Dans la zone d'amplification, deux groupes de 5 fils de 20µm de diamètre séparés l'un de l'autre de 1cm, portés à une tension de 550V, sont chacun associés à une rangée de pistes de la cathode. La cathode à pistes est divisée en deux rangées, distantes de 1mm, et décalées d'une demi-piste l'une par rapport à l'autre. Chaque rangée possède 128 pistes de 5,5mm de large et de 5cm de long. L'inter piste est de 0,5mm. Chaque piste est reliée à un préamplificateur de charge. Le signal issu des préamplificateurs est finalement envoyé vers des cartes VXI pour être mis en forme et codé.



**Figure 2-23 : Principe de fonctionnement de la chambre à dérive**

Lorsqu'un ion traverse la chambre, il ionise le gaz (isobutane à une pression de 20 mbar) contenu dans le détecteur. Le champ électrique créé entre la cathode et la grille de Frish dérive les électrons produits pour qu'ils passent à travers la grille. Les électrons sont ensuite accélérés vers les fils d'anode : c'est la zone d'amplification ; de nouvelles paires électron-ion sont formées (ionisation en avalanche) et les ions sont repoussés vers la cathode à piste et la grille de Frisch. Le mouvement des ions induit un signal sur les pistes. La position de l'avalanche est déduite de façon précise de la forme (largeur, centroïde) de la distribution de charges induite sur les pistes. La mesure de la position horizontale de l'ion incident est faite en reconstruisant le centroïde de la distribution de charge induite sur les pistes.

### **3) Le détecteur plastique**

Le détecteur plastique est un détecteur scintillant de type NE102A de 72cm de large, 15cm de haut, et de 2cm d'épaisseur. Ce détecteur est placé au bout de la chambre et arrête les ions incidents transmis. L'ion incident excite les molécules du plastique qui se désexcite en émettant des photons. Ces photons se propagent dans le plastique et sont menés par deux guides de lumière jusqu'à deux photomultiplicateurs, alimentés sous une tension de -1400V. Chaque voie est équipée d'un discriminateur qui délivre un signal pour déclencher l'acquisition de la chambre à dérive.

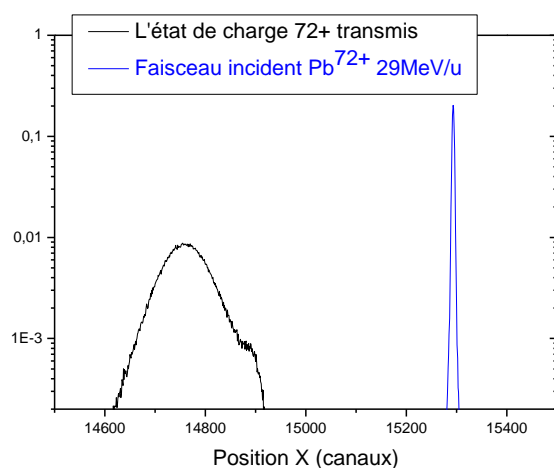
### **4) Etalonnage en Impulsion de SPEG**

La Figure 2-24 montre le pic du faisceau direct  $Pb^{72+}$  à 29MeV/u, et le pic des ions Pb transmis avec l'état de charge  $72+$  dans le cas où le faisceau est aligné suivant une direction quelconque. Ces deux distributions sont données par la chambre à dérive. L'axe horizontal indique la position des ions dans le plan focal de la chambre à dérive en unité de canal. On a 20 $\mu$ m par canal.

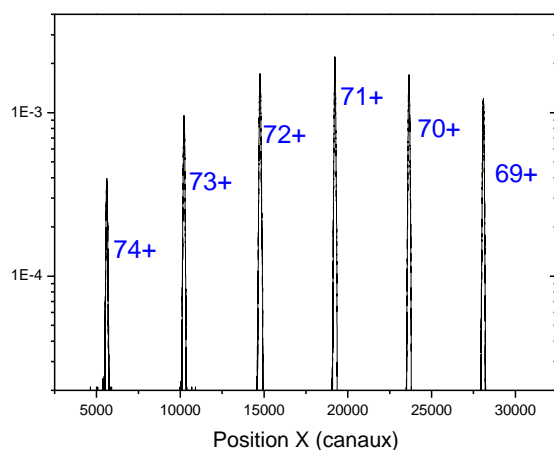
La largeur à mi-hauteur du pic du faisceau incident est 5 canaux ce qui est équivalent à 0,12mm. La largeur du faisceau dans la chambre à dérive est plus petite que sa largeur 2mm donné par le profileur à gaz juste avant la cible. Cela est dû à la focalisation du faisceau par les quadripôles et les lentilles de correction de SPEG.

Le pic des ions Pb transmis avec l'état de charge  $72+$  est plus large à cause de la fluctuation statistique de la perte d'énergie. Cette fluctuation résulte de la fluctuation statistique du nombre de collisions électroniques et des échanges de charge à l'intérieur de la cible. De l'écart entre les centres de gravité du deux pics on peut déduire la perte d'énergie des ions dans la cible.

La Figure 2-25 montre des pics des ions transmis avec plusieurs états de charge pour le même faisceau pour une incidence quelconque.



**Figure 2-24 : deux distributions données par la chambre à dérive : le faisceau incident  $Pb^{72+}$  à 29MeV/u (en bleu) et l'état de charge  $72+$  transmis dans le cas d'une direction quelconque d'incidence.**



**Figure 2-25 : la distribution des états de charge des ions transmis pour une orientation quelconque du cristal. Faisceau incident  $Pb^{72+}$  à 29 MeV/u.**

Pour la calibration de la chambre à dérive, on a utilisé celle qui avait été faite par la collaboration pendant une autre expérience. La relation qui lie la position X d'un ion dans la chambre à dérive avec sa vitesse et son état de charge est la suivante:

$$\frac{\Delta X}{K_x} = -\frac{\Delta Q}{Q} + \frac{\Delta P}{P} \quad (2) \quad \text{où } K_x \text{ est un coefficient géométrique dépendant de la position } X.$$

La calibration de la chambre consiste à trouver  $K_x$ , et après on peut trouver la perte d'énergie des ions transmis par rapport à la position du faisceau incident dans la chambre à dérive. Pour cela, un faisceau de  $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u avait été envoyé sur une cible de carbone d'épaisseur  $20\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Dans ce cas la perte d'énergie des ions transmis est négligeable, et la relation (2) se réduit à

$$\frac{\Delta X}{K_x} = -\frac{\Delta Q}{Q} \quad (3) \quad \text{puisque } \frac{\Delta P}{P} \approx 0.$$

Pour la position  $X$  d'un état de charge, on prend la valeur moyenne de sa distribution dans la chambre à dérive.

Pour une certaine valeur de la rigidité magnétique, on obtient une distribution d'états de charge transmis par la cible de carbone qui ressemble à celle de la Figure 2-25. En prenant deux états de charge voisins  $Q_1$  et  $Q_2$ , on trouve  $K_x$  pour une position  $X$  moyenne

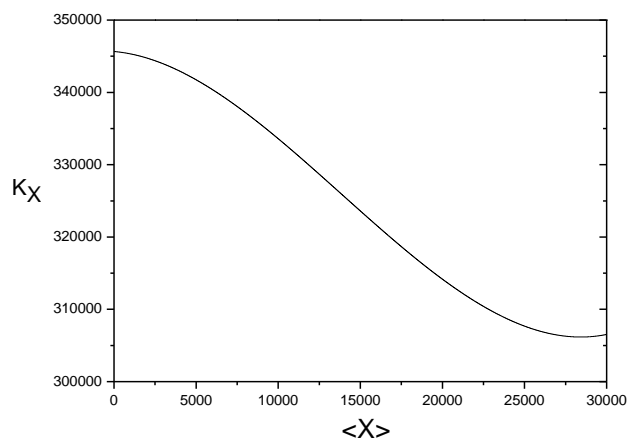
$$\bar{X} = \frac{X_2 - X_1}{2} \quad (4)$$

$$\text{Alors que } \Delta Q = Q_2 - Q_1, \Delta X = X_2 - X_1. \quad (5)$$

Et

$$K_x(\bar{X}) = \frac{Q_1(X_2 - X_1)}{Q_2 - Q_1}. \quad (6)$$

On prend des valeurs positives pour  $K_x$  et on fait un fit comme on le voit sur la Figure 2-26



**Figure 2-26 : le coefficient géométrique  $K_x$  en fonction de la position horizontale dans la chambre à dérive**

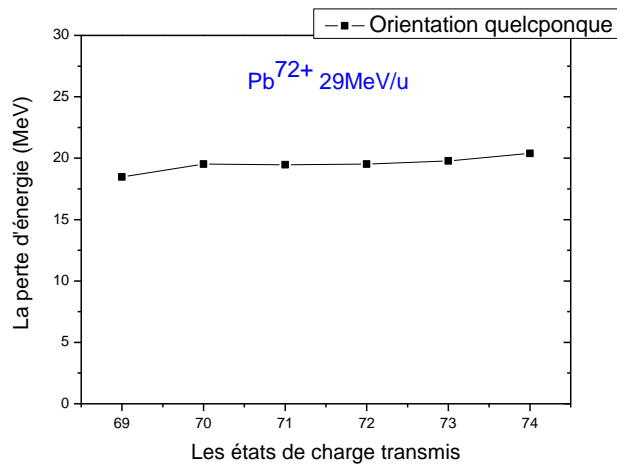


La non linéarité de  $K_x$  aux bords de la chambre est due à l'effet géométrique de l'aimant. En effet, la formule (2) n'est valable que pour des faibles variations de  $X$  par rapport au centre.

Une fois qu'on a calculé  $K_x$ , on peut relier la position dans la chambre à dérive de l'ion transmis à son énergie et sa charge. Et on peut trouver sa perte d'énergie par rapport à la position du faisceau incident dans la chambre à dérive.

D'après la calibration, un canal est équivalent à 37 KeV à haute énergie. La largeur en énergie du faisceau incident de  $Pb^{72+}$  à 29MeV/u dans SPEG est d'environ 0,2MeV. Donc la résolution en énergie mesurée dans notre expérience à haute énergie est de l'ordre de  $3.10^{-5}$ , meilleure que la résolution en énergie prévue de SPEG ( $2.10^{-4}$ ).

La Figure 2-27 montre la perte d'énergie moyenne pour les états de charge transmis dans le cas où le faisceau d'ions  $Pb^{72+}$  à haute énergie est incident suivant une direction quelconque du cristal de Ge. Cette perte d'énergie a été déterminée en utilisant la calibration de la chambre à dérive décrite ci-dessus.



**Figure 2-27 : la perte d'énergie moyenne des états de charge transmis dans le cas d'une orientation aléatoire du faisceau  $Pb^{72+}$  à 29MeV/u avec le cristal du Ge**

La variation de la perte d'énergie dans le cristal suivant l'état de charge des ions transmis est faible (Figure 2-27). En effet, l'état de charge des ions incidents  $72+$  à haute énergie est proche de l'état de charge de l'équilibre dans le cas de la cible de germanium. Alors l'état de charge des ions incidents va fluctuer autour de la charge  $72+$ , et tous les ions incidents ont le même état de charge moyen à l'intérieur du cristal. Donc, la perte d'énergie suivant une direction quelconque avec le cristal doit être indépendante de l'état de charge à la sortie.

La perte d'énergie obtenue en moyennant la perte d'énergie de tous les ions transmis dans le cas du faisceau incident de  $Pb^{72+}$  est autour de 19,5 MeV. La perte d'énergie donnée par le code SRIM2003 pour un ion plomb d'énergie 29 MeV/u dans une cible de germanium d'épaisseur  $0,86\mu m$  est de 21,6 MeV. L'écart qu'on trouve entre les valeurs mesurée et calculée est de l'ordre de 10%. Cela est dû au fait que les ions incidents sont un peu canalisés à l'intérieur du cristal parce que l'orientation quelconque utilisée pendant l'expérience est très

proche des plans associés à la direction axiale : certains ions peuvent être canalisés pendant leur parcours dans la cible.

L'état de charge du faisceau de plomb incident à haute énergie était officiellement  $73+$ . Au moment de la calibration, on a trouvé que, si l'état de charge du faisceau incident est  $73+$  dans le cas de l'orientation quelconque, alors la perte d'énergie totale dans le cristal des ions transmis varie significativement avec l'état de charge à la sortie du cristal, ce qui est impossible. Mais elle reste constante si l'état de charge incident est supposé être  $72+$  (Figure 2-27). C'est donc la valeur  $72+$  qui a été retenue. La variation sur l'état de charge, pour la même valeur de la rigidité magnétique, entraîne une variation sur l'énergie incidente. D'après l'équation (1) on a trouvé que l'énergie du faisceau incident est  $28,6 \text{ MeV/u}$ .

## Chapitre 3 : Résultats de l'expérience

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats que nous avons obtenus pour les trois systèmes ( $\text{Pb}^{72+}$  incident à 28,6 MeV/u,  $\text{Pb}^{56+}$  incident à 29MeV/u et  $\text{Pb}^{28+}$  incident à 6,5MeV/u). Tout d'abord, on présente les distributions d'états de charge et la perte d'énergie des ions transmis, ensuite on présente les différents résultats obtenus sur l'émission ionique dans les deux cas : orientation quelconque et alignement axial. A la fin, on détaille l'effet lié à la canalisation sur l'émission ionique.

### A - La distribution d'états de charge pour les trois systèmes

L'état de charge d'équilibre dans le germanium pour le Pb incident à 29 MeV/u et à 6,5 MeV/u suivant une orientation quelconque est proche respectivement de 72 et de 55 (prédite par *Leon et al* [30]).

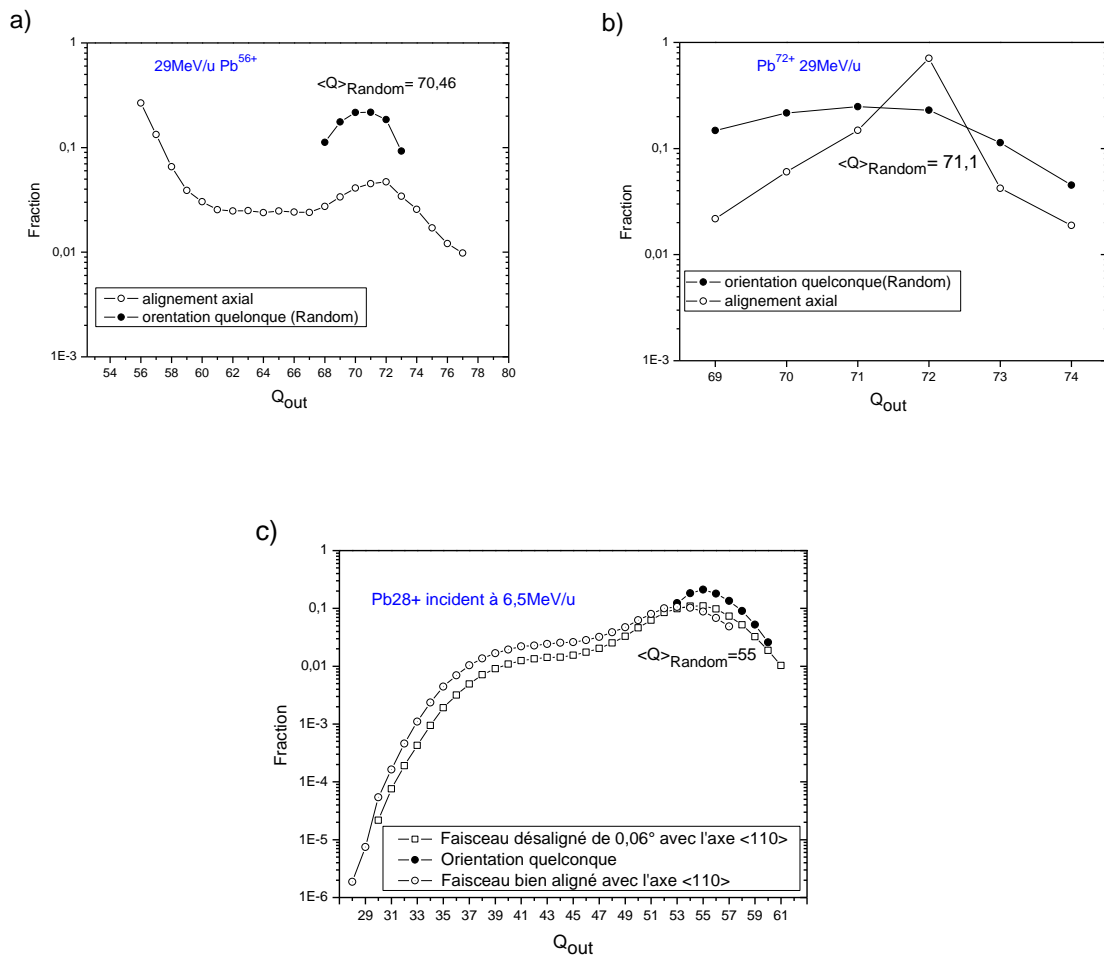


Figure 3-1 : la distribution des états de charge des ions plomb transmis à travers le cristal de germanium dans les deux cas : orientation quelconque (cercles pleins) et alignement axial (cercles vides) pour les trois systèmes ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29 MeV/u,  $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u et  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5 MeV/u).

La Figure 3-1-a montre la distribution des états de charge des ions plomb à la sortie du cristal pour les deux cas : orientation quelconque (cercles pleins) et alignement axial (cercles vides) pour le faisceau du  $\text{Pb}^{56+}$  incident à 29MeV/u.

Dans le cas d'une orientation quelconque, la distribution des états de charge s'étend de la charge 68+ jusqu'à la charge 73+. En fait la distribution doit s'étendre au-delà de ces valeurs limites mesurées. Cependant cela ne présentant pas un grand intérêt, nous n'avons pas fait de mesure systématique de l'intégralité de la distribution. La distribution présentée est donc normalisée à 1. La valeur moyenne des états de charge à la sortie est 70,46. Elle est différente de la valeur de la charge à l'équilibre qui doit être plus grande ou égale à 71, qui est l'état de charge à l'équilibre que nous avons mesuré dans le cas du faisceau de  $\text{Pb}^{72+}$  incident à 28,6MeV/u. Cette différence revient au fait que le cristal n'est pas assez épais pour que l'équilibre de charge soit vraiment atteint.

Dans le cas d'alignement axial, la distribution est très large, elle s'étend de la valeur de l'état de charge incident 56+ à la valeur 77+.

Les ions qui ont un faible état de charge à la sortie du cristal sont les ions bien canalisés. Parmi eux, il y a ceux qui sont restés gelés dans leur état de charge initial et qui sont majoritaires. Ces ions ont voyagé à l'intérieur du cristal près du centre du canal, loin des rangées d'atome, et ils ont rencontré des faibles densités électroniques. Par conséquent l'ionisation de ces ions par impact sur les électrons du milieu est faible et l'ionisation par impact sur les noyaux du milieu est supprimée.

Les ions qui ont un état de charge à la sortie du cristal plus grand que la valeur de l'état de charge moyen dans le cas d'une orientation quelconque sont les ions mal canalisés. Ces ions ont pu s'approcher des rangées d'atomes lors de leur parcours dans le cristal, et ils ont rencontré une densité électronique élevée. Alors ces ions ont été ionisés par impact sur les électrons et les noyaux du milieu.

La largeur de cette distribution revient au fait que, d'une part, la charge incidente est très loin de l'état de charge d'équilibre, et, d'autre part, les ions incidents canalisés n'ont pas le même espace transverse accessible à l'intérieur de l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Cet espace transverse dépend du paramètre d'impact initial avec les rangées d'atomes à l'entrée du cristal et de l'angle d'incidence avec la direction de l'axe  $\langle 110 \rangle$ , donc la densité électronique rencontrée et le nombre de collisions proches avec les noyaux des rangées d'atomes ne sont pas les mêmes pour tous les ions incidents canalisés.

La Figure 3-1-b montre la distribution des états de charge des ions plomb à la sortie du cristal pour les deux cas : orientation quelconque (cercles pleins) et alignement axial (cercles vides), pour le faisceau d'ions  $\text{Pb}^{72+}$  incidents à 28,6 MeV/u. La charge incidente est proche de l'état de charge d'équilibre.

Dans le cas d'une orientation quelconque, de même que précédemment, nous avons restreint la mesure entre la charge 69+ et la charge 74+. La valeur moyenne de l'état de charge à la sortie est 71,1, qui est la charge à l'équilibre.

Dans le cas d'alignement axial, la distribution n'est pas large comme dans le cas du  $\text{Pb}^{56+}$  puisque la charge incidente est proche de l'état de charge d'équilibre ; les états de charge à la sortie du cristal sont les mêmes que dans le cas d'une orientation quelconque.

Les ions bien canalisés sont principalement formés des ions qui sont restés gelés dans leur état de charge initial. Les ions mal canalisés peuvent avoir tous les états de charge entre 69+ et 74+, mais la fraction des ions mal canalisés augmente avec la charge.

La Figure 3-1-c montre la distribution des états de charge des ions plomb à la sortie du cristal pour les trois cas : orientation quelconque (cercles pleins), alignement axial (cercles vides) et faisceau légèrement désaligné de  $0,06^\circ$  avec l'axe  $\langle 110 \rangle$  (carrés vides) pour le faisceau du  $\text{Pb}^{28+}$  incidents à 6,5 MeV/u.

Dans le cas d'une orientation quelconque, la distribution des états de charge a été mesurée entre les charges 53+ et 59+. La valeur moyenne de l'état de charge à la sortie est 55. Elle n'est pas différente de la valeur de l'état de charge à l'équilibre. Cela provient du fait que les sections efficaces d'échange de charge à basse énergie sont plus grandes que celles à haute énergie.

Dans le cas d'alignement axial, la distribution est très large puisque la charge incidente est très loin de l'état de charge à l'équilibre ; elle s'étend de la valeur de l'état de charge incident 28+ jusqu'à la valeur 57+, à laquelle nous avons limité nos mesures lors de l'expérience.

Les ions bien canalisés sont ceux qui ont les faibles états de charge à la sortie, la fraction des ions gelés est très faible puisque la section efficace de perte d'électrons à basse énergie est grande. Les ions mal canalisés sont parmi les ions qui ont des grands états de charge.

Dans le cas où le faisceau incident est désaligné de  $0,06^\circ$  avec l'axe  $\langle 110 \rangle$ , ce qui correspond à 61% de l'angle critique de canalisation pour ces ions, la distribution est aussi très large et toujours pour la même raison ; elle s'étend de l'état de charge 30+ jusqu'à la valeur 61+. Le désalignement avec l'axe a diminué la fraction des ions bien canalisés et a augmenté la fraction des ions mal canalisés. La fraction des ions gelés dans leur état de charge incident était en dessous de notre limite de sensibilité.

Dans ce cas du cristal légèrement désaligné, les ions rentrent dans le cristal avec une énergie transverse plus grande que celle des ions bien alignés. Donc ces ions vont faire plus d'échange de charge puisqu'ils rencontrent une densité électronique moyenne plus grande que dans le cas de l'alignement axial parfait.

## **B - Echange de charge en couche amorphe**

Avant que les ions incidents rentrent dans le monocristal, ils traversent la couche d'impuretés à la surface, qui est amorphe et qui est de l'ordre de quelques nanomètres ; et de même, avant qu'ils sortent du cristal, ils vont traverser une couche d'impuretés sur la face arrière. Il peut y avoir des échanges de charge dans chacune de ces deux couches de surface.

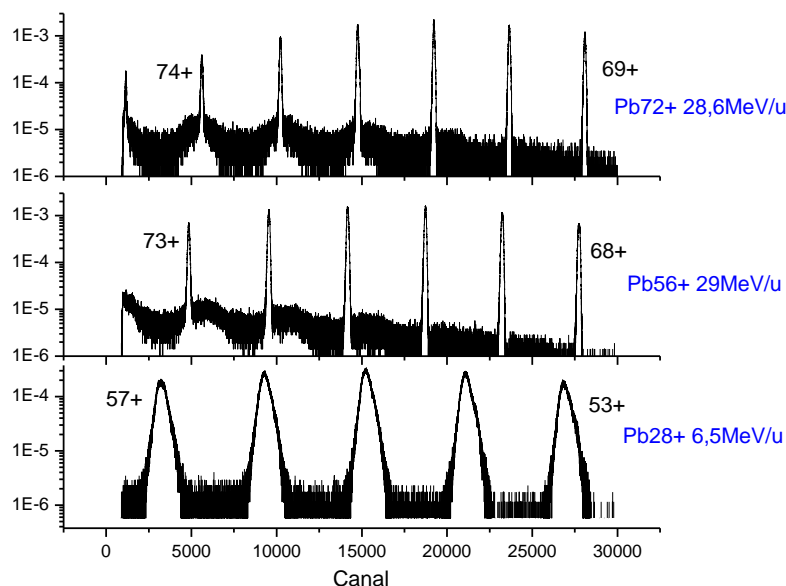
A haute énergie, comme on voit sur les courbes de distribution d'états de charge dans le cas d'alignement axial, on a une grande fraction des ions qui restent gelés dans leur état de charge incident. Donc on peut négliger la perte d'électrons des ions incidents dans les deux couches d'impuretés.

A basse énergie, et toujours d'après la distribution d'état de charge dans le cas d'alignement axial, on remarque que la majorité des ions bien canalisés sont dans la région des états de charge 36-40. Donc on estime que les ions incidents bien canalisés ont perdu en

moyenne une dizaine d'électrons en traversant les deux couches amorphes. Donc en première approximation, l'état de charge à l'entrée du cristal à basse énergie est proche de  $33^{+}$ .

### C - Bruit de fond de la grille

La Figure 3-2 montre un spectre d'état de charge donné par SPEG dans le cas d'une orientation quelconque pour les trois systèmes.



**Figure 3-2: profils d'états de charge donnés par SPEG dans le cas d'une orientation quelconque pour les trois systèmes**

Les pics d'états de charge sont plus larges à basse énergie qu'à haute énergie. Cela provient essentiellement de la fluctuation sur l'échange de charge qui est plus grande à basse énergie qu'à haute énergie.

On distingue une composante quasi-continue du bruit de fond dans ces spectres, qui est dû aux ions incidents qui traversent la grille placée devant le cristal.

La grille est assez épaisse ( $18\mu\text{m}$ ), donc les ions qui la traversent ont, d'une part, une énergie très réduite, et, d'autre part, une charge proche de la charge d'équilibre à l'énergie de sortie, c'est pourquoi le bruit de fond est important dans la région de la charge d'équilibre à haute énergie et à basse énergie. Par ailleurs, la grille a une forme cylindrique, alors les ions qui la traversent n'ont pas le même parcours à l'intérieur, donc ils n'ont pas la même perte d'énergie, et c'est pourquoi le bruit de fond prend un aspect continu.

Le bruit de fond à basse énergie décroît linéairement quand la charge décroît. Par contre à haute énergie et à côté des grands états de charge ce bruit de fond constitue des pics; pour estimer le bruit de fond dans ce cas, on a fait un fit gaussien.

Dans le cas d'une orientation aléatoire, on n'a pas besoin d'estimer exactement le bruit de fond puisque le rapport signal sur bruit de fond est très grand. Par contre, dans le cas d'alignement axial, la sélection des ions mal canalisés, comme on verra après, dans chaque

pic d'état de charge est très sensible aux ions du bruit du fond puisque le rapport entre les ions mal canalisés (qui représentent moins de 10% du faisceau incident) et les ions du bruit de fond n'est pas très grand.

## D - La perte d'énergie des ions transmis pour les trois systèmes

### I. La perte d'énergie moyenne en fonction de l'état de charge

On a utilisé l'étalonnage en énergie qu'on a fait pour la chambre à dérive de SPEG (Chapitre 2 :B -III. 4)). Pour chaque pic d'état de charge, on a calculé la perte d'énergie moyenne c.à.d. on a calculé la perte d'énergie qui correspond à la position moyenne du pic dans la chambre à dérive. Dans la suite, on présente la perte d'énergie en fonction de l'état de charge à la sortie du cristal dans les deux cas : orientation quelconque et alignement axial pour les trois systèmes.

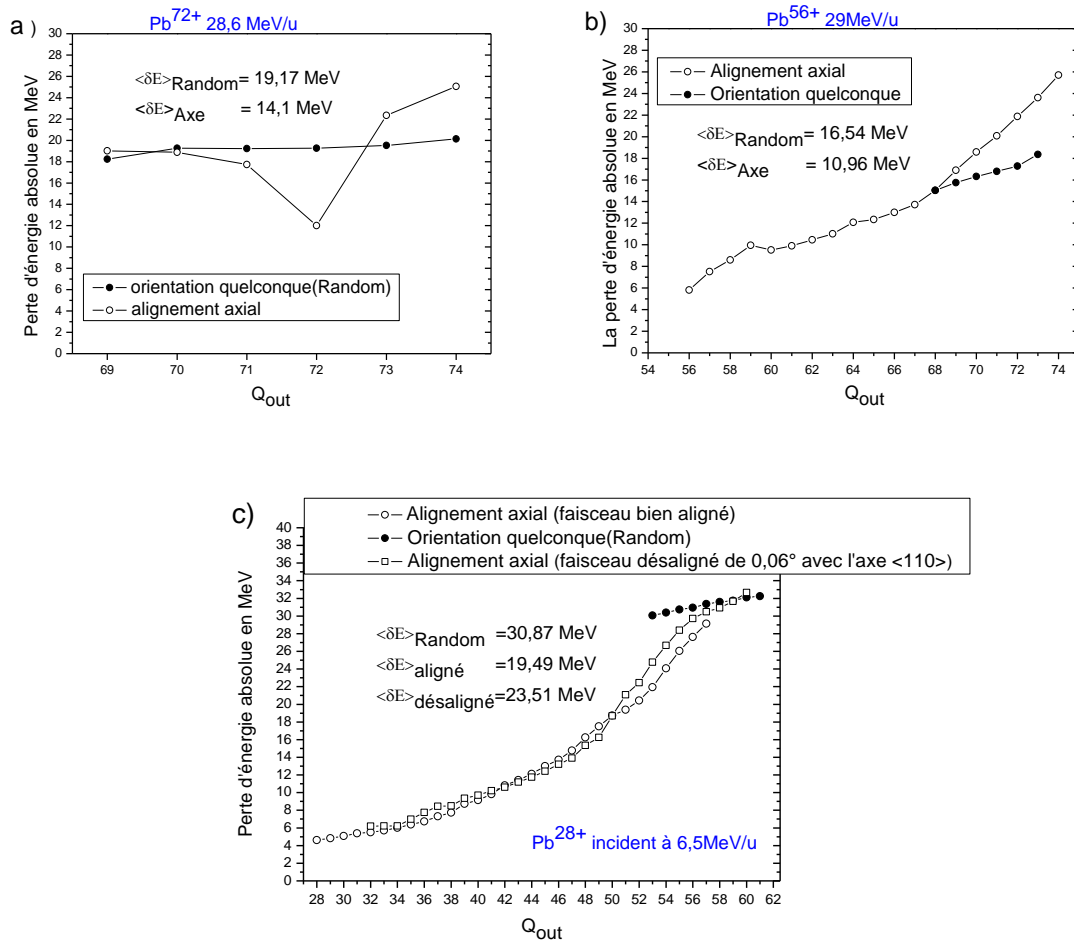


Figure 3-3: la perte d'énergie moyenne absolue en fonction de l'état de charge à la sortie du cristal dans les deux cas: orientation quelconque (cercles pleins) et alignement axial (cercles vides) pour les trois systèmes ( $Pb^{56+}$  à 29 MeV/u,  $Pb^{72+}$  à 28,6 MeV/u et  $Pb^{28+}$  à 6,5 MeV/u).

La Figure 3-3-a montre la perte d'énergie moyenne des ions transmis en fonction de leur état de charge à la sortie du cristal dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins) et de l'alignement axial (cercles vides) pour les ions  $\text{Pb}^{72+}$  incidents à 28,6MeV/u.

Dans le cas d'une orientation quelconque, la courbe varie lentement puisque la charge incidente est proche de l'état de charge à l'équilibre. La perte d'énergie moyennée sur l'ensemble des états de charge est 19,17MeV.

Dans le cas de l'alignement axial, chaque pic d'état de charge est constitué des ions bien canalisés et des ions mal canalisés. Les ions bien canalisés ont une perte d'énergie faible. Les ions mal canalisés rencontrent en moyenne des grandes densités électroniques puisqu'il y a une partie de leur parcours à côté des rangées d'atomes. Alors ces ions ont une perte d'énergie élevée.

Pour chaque pic d'état de charge, la perte d'énergie moyenne est déterminée par le rapport entre la fraction des ions mal canalisés et la fraction des ions bien canalisés. Pour les états de charge plus grands que l'état de charge incident, ce rapport est plus grand que pour les autres états de charge, surtout pour l'état de charge 72+ qui est constitué majoritairement des ions bien canalisés gelés. La perte d'énergie moyenne en moyennant sur l'ensemble des états de charge est 14,1MeV.

La Figure 3-3-b montre la perte d'énergie moyenne des ions transmis en fonction de leur état de charge à la sortie du cristal dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins) et de l'alignement axial (cercles vides) pour les ions  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29MeV/u.

Dans le cas d'une orientation quelconque, la variation avec la charge est plus forte que dans le cas du  $\text{Pb}^{72+}$  parce que l'état de charge à l'incidence 56+ est très loin de l'état de charge d'équilibre, et le cristal n'est pas assez épais pour que les ions aient le temps d'atteindre vraiment l'équilibre. La perte d'énergie moyenne, en moyennant sur l'ensemble des états de charge, est 16,54 MeV.

Dans le cas de l'alignement axial, la perte d'énergie augmente avec la charge à la sortie du cristal. En effet, d'une part, on peut calculer la charge moyenne des ions à l'intérieur du cristal comme la moyenne de la charge à l'incidence et de la charge à la sortie du cristal en première approximation. Alors, plus la charge à la sortie du cristal augmente, plus la charge moyenne à l'intérieur du cristal augmente, et ainsi la perte d'énergie qui est proportionnelle au carré de la charge augmente. D'autre part, les ions sortant avec la charge la plus élevée sont ceux ayant rencontré les plus fortes densités électroniques moyennes dans le cristal. Donc, lorsque la charge à la sortie du cristal augmente, la perte d'énergie moyenne des ions traversant le cristal augmente puisqu'elle est proportionnelle à la densité électronique moyenne rencontrée.

Les ions de faible état de charge et de faible perte d'énergie sont les ions bien canalisés. Les ions de grand état de charge et avec une perte d'énergie grande sont les ions mal canalisés. La perte d'énergie moyenne en moyennant sur l'ensemble des états de charge est 10,96 MeV.

La Figure 3-3-c montre la perte d'énergie moyenne des ions transmis en fonction de leur état de charge à la sortie du cristal dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins), de l'alignement axial (cercles vides) et dans le cas où le faisceau est désaligné avec l'axe  $\langle 110 \rangle$  de  $0,06^\circ$  (carrés vides) pour les ions  $\text{Pb}^{28+}$  incidents à 6,5MeV/u.



Dans le cas d'une orientation quelconque, la courbe varie plus lentement que dans le cas des ions  $\text{Pb}^{56+}$  même si l'état de charge à l'incidence est très loin de l'état de charge d'équilibre. Cette faible variation par rapport au faisceau  $\text{Pb}^{56+}$  provient du fait que les échanges de charge à basse énergie se font plus vite qu'à haute énergie et qu'à basse énergie les ions sortent du cristal avec une charge moyenne égale à l'état de charge d'équilibre 55 même si et le cristal n'est pas très épais. La perte d'énergie moyenne en moyennant sur l'ensemble des états de charge est  $30,87 \text{ MeV} \pm 2 \text{ MeV}$  (pour l'erreur voir ci-dessous avant la fin de cette partie).

Dans le cas d'alignement axial, la perte d'énergie augmente avec la charge à la sortie du cristal. Les ions de faible état de charge et de faible perte d'énergie sont les ions bien canalisés. Les ions de grand état de charge et avec une perte d'énergie grande sont les ions mal canalisés. La perte d'énergie moyenne en moyennant sur l'ensemble des états de charge est  $19,49 \text{ MeV} \pm 1 \text{ MeV}$ .

Dans le cas où le faisceau est désaligné de  $0,06^\circ$  avec l'axe  $\langle 110 \rangle$ , comme on a déjà vu avec la distribution d'états de charge à basse énergie, le désalignement augmente la fraction des ions mal canalisés et diminue la fraction des ions bien canalisés. La perte d'énergie moyenne en moyennant sur l'ensemble des états de charge est  $23,51 \text{ MeV} \pm 1 \text{ MeV}$ .

Durant cette partie de l'expérience à basse énergie, le temps passé pendant et entre les acquisitions pour les états de charge intermédiaires a été court, de telle sorte que le champ magnétique du spectromètre n'a pas eu complètement le temps de se stabiliser pendant les mesures. Cela a induit une incertitude non négligeable sur la valeur mesurée du  $B\rho$ , ainsi qu'une légère variation pendant les acquisitions de la position moyenne des pics d'état de charge dans la chambre à dérive. L'erreur sur la perte d'énergie des ions transmis avec un grand état de charge n'est pas négligeable, puisque l'erreur se cumule en calculant la perte d'énergie de ces ions de proche en proche à partir du faisceau incident. On l'a estimée à 2 MeV au maximum pour l'orientation quelconque et de 1 MeV dans les deux cas d'alignement axial et à  $0,06^\circ$  de l'axe.

## **II. La perte d'énergie normalisée**

Pour les expériences de canalisation, la référence est l'orientation quelconque, c.à.d. qu'on compare les effets de la canalisation dans une étude donnée avec l'orientation quelconque. Pour cela il est très pratique de définir la perte d'énergie normalisée, qui est le rapport entre la perte d'énergie des ions traversant un cristal donné dans le cas d'alignement axial et la perte d'énergie des mêmes ions traversant le même cristal dans le cas d'une orientation quelconque.

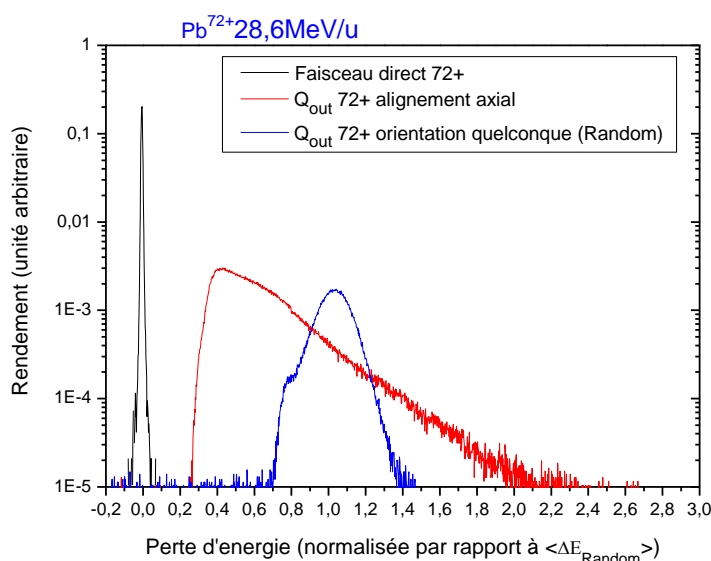
La perte d'énergie dépend de la vitesse et de la charge de l'ion incident et de la densité électronique rencontrée. La variation de la vitesse des ions lourds rapides traversant un cristal mince est négligeable. Pour la charge, si elle n'est pas à l'état d'équilibre, elle évolue à l'intérieur du cristal et sa variation n'est pas la même si on est dans une orientation quelconque ou si on est dans le cas de l'alignement axial.

Pour avoir une comparaison correcte entre alignement axial et orientation quelconque et pour mettre en relief l'effet de la densité électronique rencontrée, on va normaliser la perte d'énergie par la charge moyenne estimée à l'intérieur du cristal, qui est en première approximation la moyenne de la charge incidente et de la charge à la sortie du cristal.

Dans la suite on va présenter la perte d'énergie des ions incidents dans le cristal normalisée par rapport à la charge moyenne à l'intérieur du cristal, et par rapport à la perte d'énergie moyenne des ions dans le cas d'une orientation quelconque.

### 1) Ions $\text{Pb}^{72+}$ incidents à 28,6 MeV/u

La Figure 3-4 montre la distribution en perte d'énergie normalisée (unité perte d'énergie moyenne dans le cas d'une orientation quelconque) donnée par SPEG après sa calibration en énergie pour le faisceau incident direct, pour les ions transmis à travers le cristal de Ge avec la charge 72+ à l'émergence dans le cas d'une orientation quelconque (courbe bleue), et le spectre correspondant dans le cas d'alignement axial (courbe rouge). Dans ce cas là, on n'a pas normalisé par la charge moyenne à l'intérieur du cristal puisque la charge incidente est égale à la charge émergente.



**Figure 3-4: Distribution en énergie pour le faisceau incident  $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u : faisceau direct, spectre en perte d'énergie normalisée pour des ions transmis à travers le cristal de Ge dans le cas d'une orientation quelconque pour l'état de charge à la sortie  $Q_{\text{out}}=72+$ , spectre correspondant dans le cas d'alignement axial.**

La distribution en énergie dans le cas d'une orientation quelconque est dissymétrique. Ceci est dû au fait que l'orientation quelconque choisie est proche de la direction de l'axe et à cause de ça, on a une partie d'ions qui peut être canalisée dans des plans mineurs.

La valeur moyenne de la distribution de perte d'énergie est normalisée à 1 pour les ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque. Le spectre obtenu dans le cas d'alignement axial est plus large que celui obtenu dans le cas d'une orientation quelconque. Il varie de  $0,3 \times \Delta E_{\text{Random}}$  jusqu'à environ  $2,5 \times \Delta E_{\text{Random}}$ . Comme la charge incidente ne varie pas, ce spectre reflète la variété des trajectoires des ions à l'intérieur du cristal. Alors en faisant des sélections sur la perte d'énergie on peut sélectionner les différents espaces transverses accessibles aux ions ; ainsi ceux qui ont une grande perte d'énergie ont une grande énergie transverse, et ils peuvent voyager dans tout l'espace transverse de l'axe ; en particulier, ces ions ont rasé les rangées d'atomes à l'entrée du cristal ; à l'inverse ceux qui ont une faible

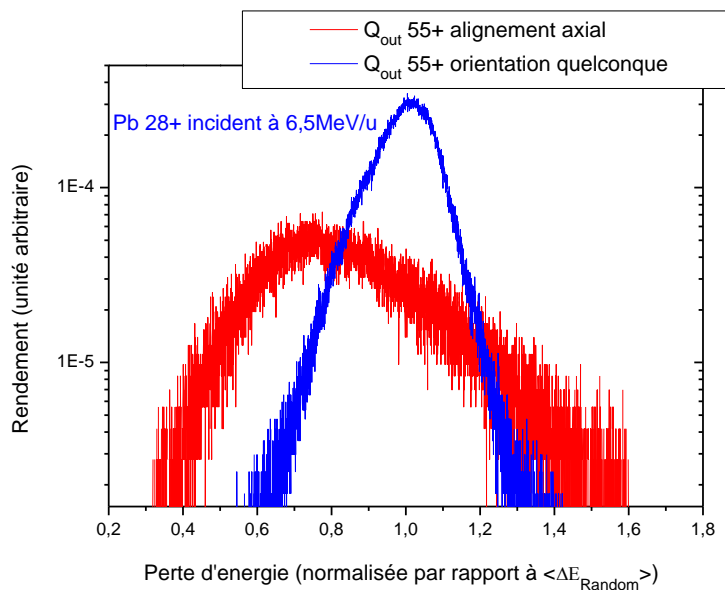
perte d'énergie sont restés au centre de l'axe, loin des rangées d'atomes, pendant tout leur parcours à l'intérieur du cristal.

Dans le cas d'alignement axial, nous ferons par la suite deux sélections particulières :

- les ions mal canalisés (de forte perte d'énergie) : ce sont tous les ions qui ont une perte d'énergie plus grande que 1 ; parmi cette sélection, on a tous les ions qui sont rentrés proche des rangées d'atomes ;
- les ions très bien canalisés : ce sont tous les ions qui ont une faible perte d'énergie autour de  $0,3 \times \Delta E_{\text{Random}}$  .

## 2) Ions $\text{Pb}^{28+}$ incidents à 6,5MeV/u

La Figure 3-5 montre la distribution en perte d'énergie normalisée (la valeur unité est la perte d'énergie moyenne dans le cas d'une orientation quelconque) pour les ions avec la charge 55+ en sortie du cristal dans le cas d'une orientation quelconque (courbe bleue), et le spectre correspondant dans le cas d'alignement axial (courbe rouge). Dans ce cas là, on n'a pas normalisé par la charge moyenne à l'intérieur du cristal puisque les deux charges en sortie sont identiques pour les deux orientations.



**Figure 3-5: Distribution en énergie pour le faisceau incident  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u : spectre en perte d'énergie normalisée pour des ions transmis à travers le cristal de Ge dans le cas d'une orientation quelconque pour l'état de charge à la sortie  $Q_{\text{out}}=55+$ , spectre correspondant dans le cas de l'alignement axial.**

La distribution en énergie dans le cas d'une orientation quelconque est aussi dissymétrique, l'explication étant la même qu'à haute énergie.

Le spectre dans le cas d'alignement axial est plus large que celui dans le cas d'une orientation quelconque. Il varie de  $0,4 \times \Delta E_{\text{Random}}$  jusqu'au-delà de  $1,5 \times \Delta E_{\text{Random}}$  : bien que les ions à la sortie du cristal aient une charge 55+ qui est égale à la charge d'équilibre dans le cas

d'une orientation quelconque, il n'y a pas que des ions mal canalisés, puisqu'on a des faibles pertes d'énergie.

Ce spectre est moins large qu'à haute énergie (Figure 3-4). Cela provient en partie du fait que les ions incidents, chaque fois qu'ils sont à côté des rangées d'atomes, sont plus vite repoussés que les ions à haute énergie. Mais surtout, nous avons sélectionné un seul état de charge proche de la charge à l'équilibre, et donc il y a peu d'ions très bien canalisés parmi eux.

On choisit les ions mal canalisés ou de forte perte d'énergie en prenant les grands états de charge, de 53+ jusqu'à 57+, et en faisant une sélection sur les ions qui ont une perte d'énergie normalisée plus grande que 1.

Sur la Figure 3-5, les ions de faible perte d'énergie autour de la valeur  $0,4 \times \Delta E_{\text{Random}}$  ne sont probablement pas parmi les ions les mieux canalisés puisqu'ils ont fait beaucoup d'échanges de charge. Pour ce système, on fera la sélection des ions les mieux canalisés sur les états de charge proches de la charge incidente.

## **E - Emission ionique**

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats pour l'émission ionique. Grâce à notre système de détection d'ions secondaires, nous avons regardé la multiplicité qui est le nombre d'ions détectés sur le LAG par ion incident. Ce nombre est lié au nombre d'ions positifs émis de la surface du cristal par ion incident. L'identification de la masse pour chaque ion détecté nous a permis de regarder le rendement des différentes espèces émises, qui est le nombre d'ions pour une espèce donnée par ion incident. Dans un premier temps, nous présenterons l'étude effectuée sur ces grandeurs pour les ions transmis dans le cas d'une orientation aléatoire, pour les deux systèmes à haute énergie, et pour le système à basse énergie ; dans un second temps, nous présenterons les résultats correspondant dans le cas d'alignement axial. Dans ce dernier cas, on présente ces grandeurs en fonction de la perte d'énergie normalisée des ions dans le cristal.

### **I. Orientation quelconque**

Pour le cas d'une orientation quelconque, on a pris l'ensemble des ions transmis à travers le cristal avec les états de charge 69+ à 74+ pour le cas des ions  $\text{Pb}^{72+}$  incidents à 28,6 MeV/u, les états de charge 68+ à 73+ pour le cas de  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29 MeV/u et 53+ à 57+ pour le cas de  $\text{Pb}^{28+}$  incidents à 6,5 MeV/u.

#### **1) Spectre temps de vol du LAG**

La Figure 3-6 montre trois spectres normalisés de temps de vol d'ions secondaires émis de la surface du germanium. Ce sont des spectres bruts donnés par le LAG. L'axe des abscisses est en unité de canal (1 canal=0,6ns), et l'axe des ordonnées est en unité de coups par canal (unité=1coup).

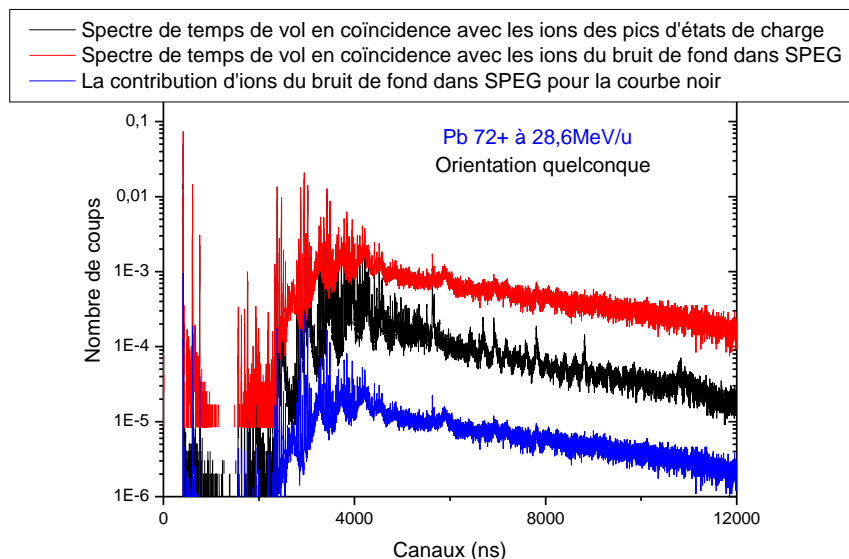
Ces trois spectres sont en coïncidence avec tout ou partie des ions détectés dans SPEG pour cette valeur de la rigidité magnétique. La courbe noire correspond au spectre de temps de vol en coïncidence avec l'ensemble des ions détectés dans SPEG. La courbe rouge correspond au spectre de temps de vol en coïncidence avec la sélection d'ions du bruit de fond dans SPEG (Figure 3-2). La courbe bleue correspond à la contribution d'ions du bruit de fond qui se trouvent dans la sélection totale des pics d'états de charge dans SPEG. Cette courbe est la

même que la courbe rouge, mais elle est multipliée par le rapport entre le nombre d'ions du bruit du fond estimé à l'intérieur de la sélection dans SPEG qui renferme les pics d'états de charge et le nombre d'ions qui se trouve dans la sélection choisie pour le bruit de fond dans SPEG ; et pour qu'on puisse la comparer avec la courbe noire, on l'a normalisée aussi par le nombre total d'ions qui se trouvent dans la sélection dans SPEG pour les pics d'états de charge.

Dans ces spectres de temps de vol, il y a des pics de masses bien définies, c'est-à-dire les espèces dues aux impuretés déposées à la surface, qui sont des groupements carbonés. Par ailleurs il y a le bruit de fond continu qui n'est pas négligeable et qu'on attribue aux ions qui résultent de la fragmentation des grosses molécules durant la phase d'accélération entre la surface du cristal et la grille. De plus, certains pics de temps de vol, qui sont eux aussi affectés par la fragmentation, sont plus larges que les autres pics Chapitre 2 :B -II. 4)d).

Le nombre d'ions émis par ion participant au bruit de fond dans SPEG est le plus élevé. En effet, les électrons émis lors du passage d'ions incidents à travers la face arrière de la grille sont accélérés par la différence de potentiel entre la grille et la cible (+10kV) ; alors ils vont déposer de l'énergie en surface qui va contribuer à l'émission ionique. Aussi le rapport entre le niveau du bruit de fond et les pics de temps de vol est le plus grand dans ce cas là.

La soustraction de la contribution d'ions du bruit de fond dans SPEG revient à soustraire la courbe bleue de la courbe noire. Après la soustraction, il reste encore du bruit de fond d'une autre nature dans le spectre de temps de vol, c'est-à-dire la fragmentation ne vient pas seulement de la contribution d'ions incidents qui traversent la grille.



**Figure 3-6:** spectres de temps de vol d'ions secondaires émis de la surface du Ge dans le cas d'une orientation quelconque: en coïncidence avec les ions de l'ensemble des pics d'états de charge dans SPEG (courbe noire), en coïncidence avec les ions du bruit de fond dans SPEG (courbe rouge), la contribution d'ions du bruit de fond qui se trouvent dans la sélection des pics d'états de charge dans SPEG (courbe bleue) ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6MeV/u)

La Figure 3-7 montre une partie du spectre de la figure 10 mais calibré en masse. Il s'étend de la masse 1 u.m.a, qui est la masse de l'hydrogène, jusqu'à la masse 200 u.m.a. Au delà cette dernière masse, il n'y a que du bruit de fond.

La procédure suivie pour convertir le temps de vol en unité de masse a été décrite ailleurs (Chapitre 2 :B -II. 4)e). Il faut noter que nous avons choisi un incrément constant en unité de masse (contrairement au spectre en temps de vol). Un canal correspond à 0,013 uma.

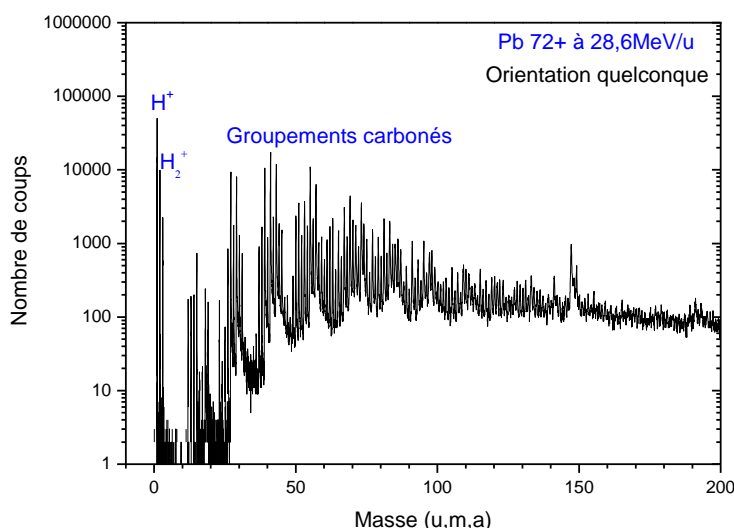


Figure 3-7: spectre de masse des ions secondaires émis par la surface du Ge dans le cas d'une orientation quelconque (Pb<sup>72+</sup> à 28,6MeV/u)

## 2) La distribution de la multiplicité et sa valeur moyenne

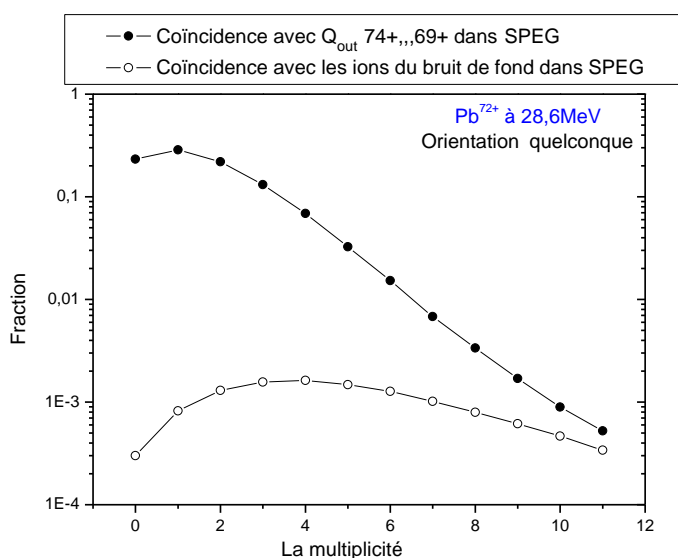


Figure 3-8: distributions de la multiplicité des ions secondaires émis par la surface du cristal de Ge dans le cas d'une orientation quelconque : en coïncidence avec les ions de l'ensemble des états de charge (cercles pleins) et en coïncidence avec les ions du bruit de fond de SPEG (cercles vides).

La Figure 3-8 montre la distribution de la multiplicité des ions secondaires qui est, comme on l'a déjà écrit, le nombre d'ions détectés par ion incident, dans une gamme de temps qui s'étend de 0 jusqu'à 12000ns. Nous avons limité la valeur maximum de la multiplicité à 11, nous justifierons ce choix plus loin.

La courbe avec les cercles pleins correspond à la multiplicité d'ions secondaires pour les ions incidents transmis, c'est-à-dire qu'on s'intéresse au nombre d'ions émis détectés par le LAG en coïncidence avec les ions incidents transmis détectés par SPEG. La coïncidence avec SPEG se fait sur une certaine sélection qui renferme les pics d'états de charge. Cette courbe est normalisée au nombre d'ions dans la sélection qu'on a faite dans SPEG. Comme on voit sur la figure, 23% des événements ont une multiplicité égale à 0 c'est à dire que pour 23% des ions incidents le LAG n'a détecté aucun ion secondaire. Puisque le LAG a une efficacité de détection proche de 100%, alors on peut dire que 23% des ions incidents n'émettent pas d'ions secondaires en surface. La valeur moyenne de cette distribution qui est la valeur moyenne de la multiplicité totale est 1,75. L'erreur sur la valeur moyenne de la multiplicité totale est faible puisque nous avons pris un nombre d'événements plus grand que 1000.

La courbe avec les cercles vides correspond à la multiplicité d'ions secondaires en coïncidence avec la sélection d'ions du bruit de fond dans SPEG (les ions qui ont traversé la grille). Cette courbe est multipliée par le rapport entre le nombre d'ions du bruit de fond estimé à l'intérieur de la sélection dans SPEG qui renferme les pics d'états de charge, et le nombre d'ions dans la sélection choisie pour le bruit de fond dans SPEG ; pour qu'on puisse la comparer avec la première, on l'a normalisée aussi au nombre total d'ions dans la sélection dans SPEG pour les pics d'états de charge. La soustraction du bruit de fond revient à soustraire ces deux courbes.

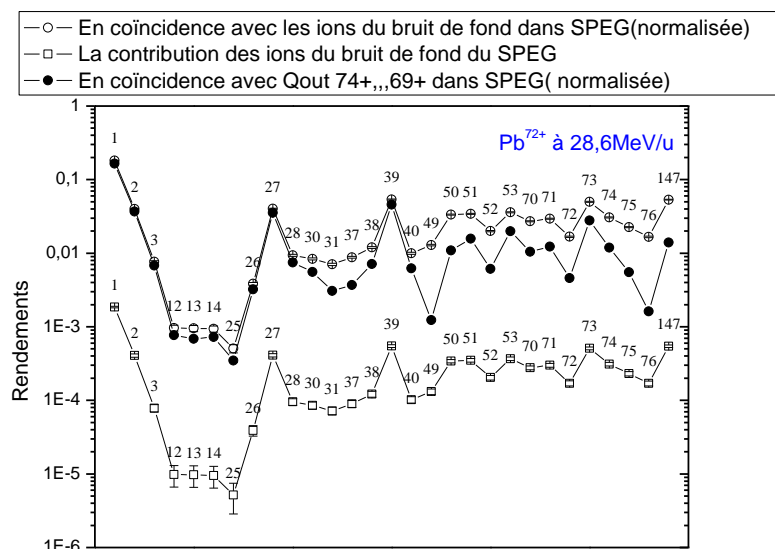
La contribution des ions du bruit de fond dans SPEG dans la proportion des événements qui ont une multiplicité nulle est de 3%, c.à.d. on a presque toujours de l'émission ionique en surface pour les ions incidents qui traversent la grille, et ces événements (les ions traversant la grille) sont de grande multiplicité. En comparant les deux courbes, on remarque qu'elles s'approchent de plus en plus lorsque la multiplicité augmente. Au moment du dépouillement des données de l'expérience, on a limité nos courbes à la multiplicité 11 puisque pour les événements qui ont une multiplicité plus grande que 11 on ne peut pas isoler le bruit de fond.

Après la soustraction du bruit de fond, la valeur moyenne de la multiplicité totale des ions secondaires émis en coïncidence avec les ions des pics des états de charge dans SPEG varie un petit peu, elle passe à 1,716. Cette faible variation de la multiplicité provient du fait qu'en orientation quelconque, le rapport entre le nombre d'ions de l'ensemble des états de charge sur le nombre d'ions du bruit de fond correspondant est très grand. L'erreur sur la valeur moyenne de la multiplicité totale est négligeable puisque le nombre d'événements (le nombre d'ions dans la sélection dans SPEG) est toujours plus grand que 1000.

### 3) Rendements

La Figure 3-9 présente les rendements pour quelques espèces émises. On a la famille de l'hydrogène ( $H^+$ ,  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ ); on a trois groupes de masses qui sont équivalents à trois familles de trois chaînes carbonées : la première commence par la masse 25, la deuxième commence par la masse 37 et la troisième commence par la masse 49; on a les masses qui se

trouvent dans la région des isotopes de Ge et aussi on a la masse 147 qui est caractéristique des graisses à vide utilisées dans les chambres à collision.



**Figure 3-9: rendements de différentes masses émises (les masses sont indexées sur les courbes) dans le cas d'une orientation quelconque : en coïncidence avec les ions du bruit de fond dans SPEG (cercles vides), en coïncidence avec les pics des états de charge dans SPEG (la contribution d'ions du bruit de fond est enlevée) (cercles pleins), la contribution des ions du bruit de fond (carrés vides) ( $Pb^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

La courbe avec les cercles vides correspond aux rendements de ces quelques espèces émises en surface en coïncidence avec les ions de la sélection du bruit de fond dans SPEG ; ses points sont normalisés par le nombre total d'ions qui se trouvent dans cette sélection. Les rendements dans ce cas là sont les plus grands puisqu'on sélectionne les ions qui traversent la grille.

La courbe avec les cercles pleins correspond aux rendements de ces quelques espèces émises en surface en coïncidence avec les ions de la sélection des pics des états de charge ( $74+,73+,72+,71+,70+,69+$ ) dans SPEG. La contribution des ions du bruit de fond est enlevée. Ces points sont normalisés par le nombre total d'ions qui se trouvent dans cette sélection sans les ions du bruit de fond.

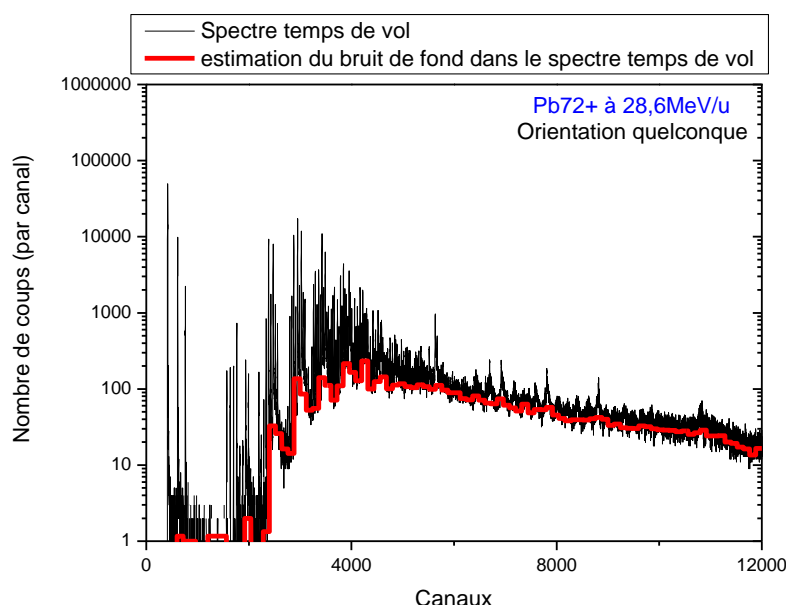
La courbe avec les carrés vides correspond à la contribution d'ions du bruit de fond qui se trouvent dans la sélection totale des pics d'états de charge dans SPEG. Cette courbe est la même que celle avec les cercles vides mais elle est multipliée par un facteur de normalisation (Chapitre 3 :E -I. 2)).

Ces courbes varient de la même façon, sauf que, pour les espèces avec faibles rendements en coïncidence avec les ions des pics d'états de charge, leurs rendements augmentent significativement en coïncidence avec les ions du bruit de fond dans SPEG.

L'erreur statistique est très faible, elle est de la même taille que les symboles utilisés.



Maintenant nous allons estimer le rendement d'ions du bruit de fond du LAG dans le spectre de temps de vol. Comme on l'a déjà dit, ce bruit de fond est dû essentiellement à la fragmentation des grandes espèces. La Figure 3-10 montre le même spectre de temps de vol que la Figure 3-6, et aussi le spectre correspondant du bruit de fond de temps de vol estimé.



**Figure 3-10: spectre de temps de vol d'ions secondaires émis en surface en coïncidence avec les ions des pics d'états de charge dans SPEG dans le cas d'une orientation quelconque (courbe noire), spectre correspondant du bruit de fond du temps de vol estimé (courbe rouge) ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

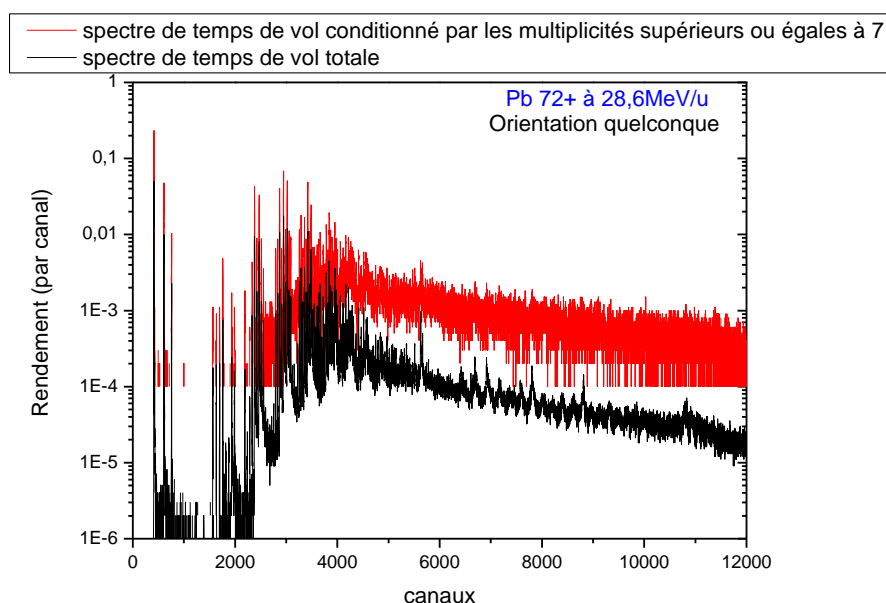
L'idée de la méthode appliquée pour estimer le bruit de fond dans le spectre de temps de vol est basée sur le fait que sur un certain nombre de canaux, qui est plus grand que la largeur du pic le plus large dans le spectre, le niveau du bruit de fond doit être le minimum. On a choisi d'abord de diviser le spectre de temps de vol par des tranches de 120 canaux puisque le pic le plus large ne dépasse pas en largeur 60 canaux. Ensuite on a divisé de nouveau chaque tranche en deux parties égales de 60 canaux. Sur chaque partie, on a cherché le nombre minimum d'ions émis détectés sur trois canaux successifs. Après on a moyenné les deux minima des deux parties de 60 canaux. Comme le bruit de fond est sensé être le niveau le plus bas sur les 120 canaux, on a cette valeur moyenne comme le niveau du bruit de fond sur 120 canaux.

Cette méthode donne une estimation du bruit de fond s'il y a assez de statistique (ce qui est notre cas) avec une incertitude systématique inférieure à 10%.

Sur chaque acquisition on prend soin d'enlever la contribution des ions qui traversent la grille. Le nombre d'ions de bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident (excluant les ions incidents qui traversent la grille) est 0,54. Cette valeur doit être comparée avec la valeur de la multiplicité totale des ions secondaires qui est égale à 1,72, c.à.d. que pour chaque ion incident qui ne traverse pas la grille, on a en moyenne 1,72 ions secondaires émis, et parmi cela on a en moyenne 0,54 ions secondaires émis et qui sont des ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol.

#### 4) La fragmentation des principales espèces émises

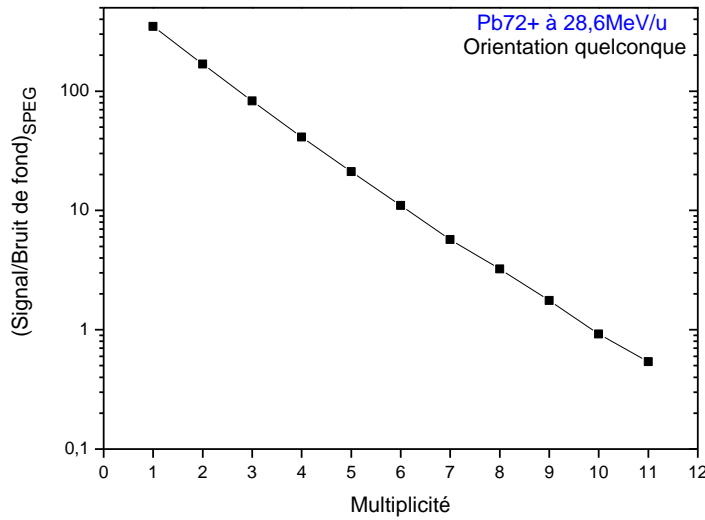
La Figure 3-11 montre deux spectres de temps de vol d'ions secondaires. La courbe noire correspond au spectre de temps de vol obtenu en coïncidence avec les ions de l'ensemble des pics d'états de charge, et la courbe rouge qui est la même que la courbe noire mais conditionné avec les grandes multiplicités (supérieures à 6).



**Figure 3-11: spectres de temps vol des ions secondaires normalisés par ion incident : la courbe noire correspond au spectre total en coïncidence avec les ions de charge 69+ à 74+ (fond de SPEG soustrait), et la courbe rouge correspond au même spectre mais conditionné par les grandes multiplicités.**

Le rapport entre le niveau du bruit de fond et les pics de temps de vol a augmenté lorsqu'on a conditionné les événements avec les grandes multiplicités. Dans ce dernier cas la contribution des ions du bruit de fond dans SPEG n'a pas été enlevée puisque pour les grandes multiplicités il n'y a pas assez de statistique, et la soustraction de deux spectres est difficile à cause des fluctuations statistiques du spectre de temps de vol.

La Figure 3-12 montre le rapport entre le nombre d'ions de la sélection de l'ensemble des pics d'états de charge pour lesquels on a eu une multiplicité d'ions secondaires donnée, et le nombre correspondant d'ions du bruit de fond dans SPEG. Ce rapport diminue lorsque la multiplicité augmente, et puisqu'on a conditionné notre spectre de temps de vol avec les grandes multiplicités (>6) (Figure 3-11), donc on peut dire que l'augmentation du rapport entre le niveau du bruit de fond dans le spectre de temps de vols et les pics des différentes masses émises vient partiellement de la contribution des ions qui traversent la grille (les ions du bruit de fond dans SPEG).



**Figure 3-12: rapport entre les ions des pics d'états de charge et les ions du bruit de fond dans SPEG en fonction de la multiplicité dans le cas d'une orientation quelconque (Pb<sup>72+</sup> à 28,6 MeV/u).**

Jusqu'à maintenant on sait qu'on a de la fragmentation et normalement, la valeur moyenne de la multiplicité totale augmente avec la fragmentation ; malgré ça on n'a pas réussi à quantifier la fragmentation dans les événements de grande multiplicité car on n'arrive pas à enlever la contribution des ions du bruit de fond pour ces événements à cause du manque de statistique.

### 5) Comparaison de la distribution de multiplicité à une distribution de Poisson

Si on suppose que les ions secondaires sont émis d'une façon indépendante les uns des autres, alors la distribution de la multiplicité doit être une distribution de Poisson avec

$$P(n) = \frac{\mu^n e^{-\mu}}{n!}$$

Où  $n$  est la valeur de la multiplicité,  $P$  la probabilité et  $\mu$  la valeur moyenne de la multiplicité.

L'écart entre les deux distributions doit être dû à la fragmentation des grandes espèces.

Pour trouver cette distribution on a besoin de trouver sa valeur moyenne  $\mu_{\text{poisson}}$ . La probabilité  $P_{\text{poisson}}(0)$  d'avoir zéro événement est égale à  $\text{Exp}(-\mu_{\text{poisson}})$ . On a cette probabilité  $P_{\text{poisson}}(0)$  d'après la distribution de la multiplicité d'ions secondaires expérimentale qui est égale à 0,23. Donc la valeur moyenne est  $\mu_{\text{poisson}}=1,47$  qui est différente de la valeur moyenne de la multiplicité totale mesurée expérimentalement qui est 1,72. On attribue cette différence, comme on l'a déjà écrit, à la fragmentation. Et le nombre d'ions ayant fragmenté est égal à cette différence (si on suppose qu'un événement de fragmentation ne produit que deux fragments).

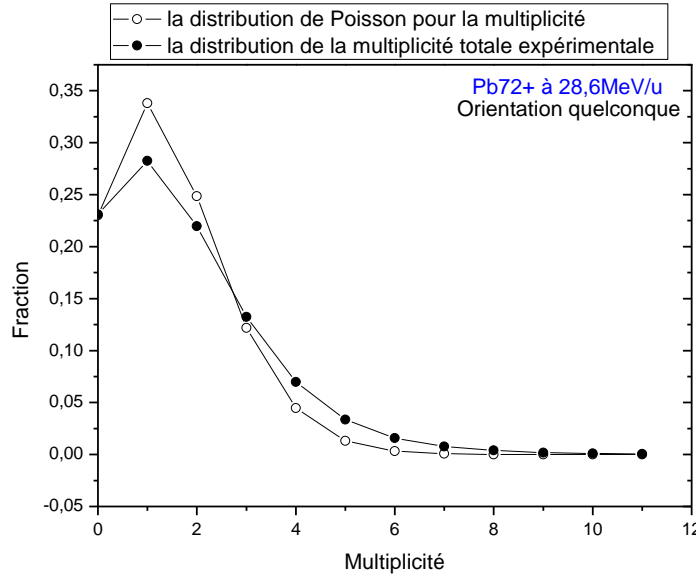
La Figure 3-13 montre ces deux distributions. A partir de l'écart entre les deux courbes au point qui donne la fraction pour lequel on a un seul ion émis, on peut calculer la probabilité de la fragmentation  $Pf$  d'un ion émis, en  $n$  ions ( $n= 2, 3, 4\dots$ ) :

$$P_{\text{exp}}(1) = P_{\text{poisson}}(1) - [P_{\text{poisson}}(1) \times Pf] \text{ et on trouve } Pf = 0,164.$$

De plus, à partir de l'écart entre les deux courbes au point qui donne la fraction pour lequel on a deux ions émis, on peut calculer la probabilité de la fragmentation d'un ion émis en deux morceaux  $Pf_2$  :

$$P_{\text{exp}}(2) = P_{\text{poisson}}(2) + [Pf_2 \times P_{\text{poisson}}(1)] - [P_{\text{poisson}}(2) \times Pf \times [2 - Pf]] \text{ et on trouve } 0,137.$$

L'écart entre les autres points peuvent nous donner aussi la probabilité de fragmentation d'un ion émis en trois morceaux  $Pf_3$  qui est égale à 0,013, et la probabilité de fragmentation d'un ion en 4 morceaux  $Pf_4$  qui est égale à 0,008.....



**Figure 3-13: distribution de la multiplicité d'ions secondaires émis en surface: expérimentale (cercles pleins), et calculée pour une distribution de Poisson de même  $P(0)$  que la distribution expérimentale (cercles vides) ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

On peut trouver le nombre d'ions secondaires émis issus de la fragmentation par ion incident à travers la formule suivant :

$$\sum_n n \times Pfn \times \mu_{\text{poisson}}$$

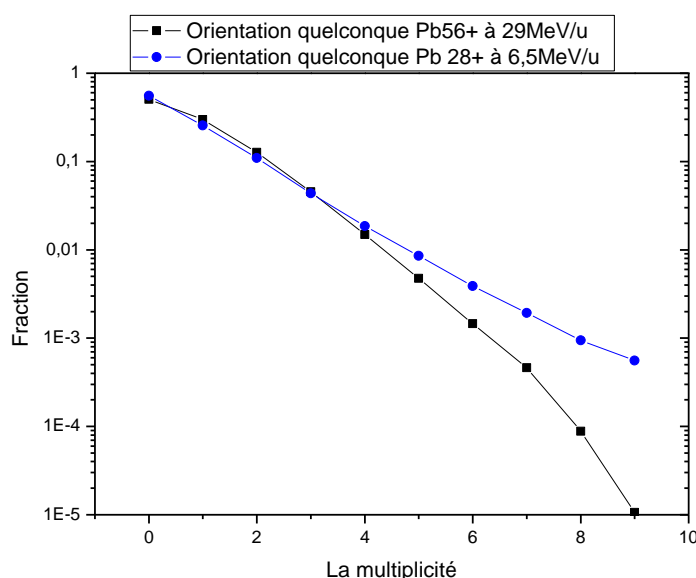
Le résultat dans ce cas là est 0,56. Cette valeur est proche du nombre de bruit de fond émis par ion incident, qu'on a estimé dans le spectre de temps de vol, et qui est égal à 0,54. Dès maintenant, on prend la moyenne de ces deux valeurs. Le rapport entre le nombre d'ions du bruit de fond du temps de vol et le nombre total d'ions secondaires émis est 0,32.

Donc la différence entre la valeur moyenne de la multiplicité expérimentale et celle de la distribution de Poisson donne le nombre d'ions ayant subi une fragmentation ; la différence entre les deux courbes de la Figure 3-13 nous a permis de calculer les différentes probabilités de fragmentation et de trouver le nombre d'ions issus de la fragmentation.

## 6) Ions $\text{Pb}^{56+}$ et $\text{Pb}^{28+}$ incidents à 29 MeV/u et à 6,5 MeV/u respectivement

Dans cette partie, nous présentons les résultats obtenus pour les deux faisceaux  $\text{Pb}^{56+}$  et  $\text{Pb}^{28+}$  incidents respectivement à 29 MeV/u et à 6,5 MeV/u, dans le cas d'une orientation aléatoire. Et comme dans le cas du  $\text{Pb}^{72+}$ , nous avons soustrait la contribution d'ions qui traversent la grille (les ions du bruit de fond dans SPEG). Tous les résultats présentés ci-dessous sont obtenus en coïncidence avec les ions transmis avec les états de charge de 68+ à 73+, dans le cas de  $\text{Pb}^{56+}$ , et de 53+ à 57+ dans le cas de  $\text{Pb}^{28+}$ .

### a. La distribution de la multiplicité totale et sa valeur moyenne

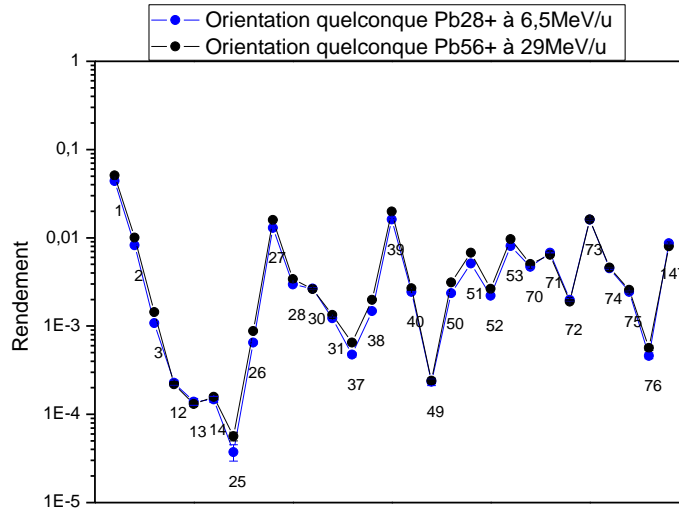


**Figure 3-14:** distributions de multiplicité des ions secondaires: ions  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29 MeV/u (cercles noirs) et ions  $\text{Pb}^{28+}$  incidents à 6,5 MeV/u (cercles bleus).

La Figure 3-14 présente la distribution de la multiplicité des ions secondaires émis. La courbe avec les cercles noirs correspond au cas d'ions  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29 MeV/u ; la valeur moyenne de cette distribution est 0,78. La courbe avec les cercles bleus correspond au cas d'ions  $\text{Pb}^{28+}$  incidents à 6,5 MeV/u ; la valeur moyenne de cette distribution est 0,78. Nous nous sommes arrêtés à la multiplicité 9 pour les deux systèmes à cause du problème de soustraction du bruit de fond. Les deux valeurs moyennes sont égales même si les deux distributions sont différentes. En effet, à basse énergie d'une part, on a plus d'événements avec des grandes multiplicités, et, d'autre part, on a plus d'événements avec la multiplicité zéro. Cela veut dire qu'à basse énergie, d'une part, on a moins de chance d'avoir de l'émission ionique en surface qu'à haute énergie, et, d'autre part, lorsqu'on a de l'émission, on favorise les événements avec des grandes multiplicités.

## b. Rendements

La Figure 3-15 montre les rendements de plusieurs masses émises pour les deux faisceaux d'ions incidents dans le cas d'une orientation quelconque (les masses sont en label). Les deux courbes sont presque les mêmes pour les deux cas ; la courbe noire ( $\text{Pb}^{56+}$ ) est légèrement au dessus de la courbe bleue ( $\text{Pb}^{28+}$ ) pour la plupart des points, mais la différence ne dépasse pas les barres d'erreur statistiques.



**Figure 3-15:** rendements de différentes masses émises (les masses sont en label) dans le cas d'une orientation quelconque : ions  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29MeV/u (cercles noirs) et ions  $\text{Pb}^{28+}$  incidents à 6,5MeV/u (cercles bleus).

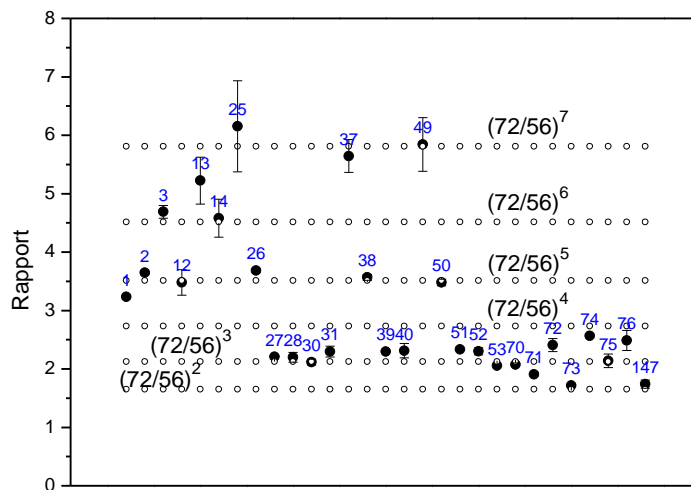
Comme dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$ , on a estimé le bruit de fond dans le spectre de temps de vol d'ions secondaires émis pour les deux systèmes. Le nombre d'ions de bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident (excluant les ions incidents qui traversent la grille) est 0,24 dans le cas du  $\text{Pb}^{56+}$  et 0,32 dans le cas du  $\text{Pb}^{28+}$ .

## 7) Comparaison des trois systèmes

Le taux de perte d'énergie moyenne pour le  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5 MeV/u est inférieur au taux de perte d'énergie pour le  $\text{Pb}^{56+}$  à 29 MeV/u dans la couche amorphe et à l'entrée du cristal (en prenant l'état de charge 33+) (SRIM2003). Malgré cela, les rendements des différentes masses que nous avons présentées et la valeur moyenne de la multiplicité totale sont proches. Cette comparaison illustre le fait que le taux de perte d'énergie n'est pas une bonne variable pour étudier la variation des rendements et de la multiplicité. C'est pourquoi nous allons faire cette étude en fonction de la charge et de la vitesse de l'ion incident.

### a. Etude en fonction de la charge

Pour étudier les différentes variations des rendements avec la charge incidente, on compare les deux systèmes à haute énergie pour les ions incidents  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$ . La Figure 3-16 montre le rapport entre les différents rendements des deux systèmes.



**Figure 3-16: rapport entre les rendements d'émission pour une sélection de masses (indexées sur les points) pour les ions incidents  $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u et  $\text{Pb}^{56+}$  à 29 MeV/u, pour une orientation quelconque. Les lignes horizontales correspondent aux différentes puissances entières du rapport des deux charges.**

Les lignes horizontales indiquent la valeur du rapport des deux charges incidentes avec une certaine puissance  $(72/56)^n$  et  $n=2, 3, 4, 5, 6, 7$ .

Pour la famille de l'hydrogène, on a pour l'ion  $\text{H}^+$  une dépendance avec la charge en  $q^n$  avec  $n = 4, 7$ . Pour  $\text{H}_2$ ,  $n = 5, 15$  et pour  $\text{H}_3$   $n = 6, 15$ .

Les masses 25, 37 (25+12) et 49 (37+12) ont presque la même dépendance avec la charge en puissance  $n$  qui est proche de 7.

Pour les masses 26, 38 (26+12), 50 (38+12), on observe aussi la même dépendance avec la charge en puissance de  $n$  qui est proche de 5.

Toutes les autres masses ont une dépendance avec la charge en puissance de  $n$  qui est entre 2 et 4. Parmi celles-ci, on a les masses 27, 39 (27+12) et 51 (39+12), avec une dépendance en  $q^n$  et  $n \sim 3$ .

Deux autres masses remarquables, 73 et 147, ont une dépendance plus faible en  $q^2$ .

On a donc une dépendance avec la charge qui varie entre fort, moyenne et faible suivant l'espèce émise. De plus les différentes espèces émises se regroupent dans des familles avec une dépendance qui respecte la périodicité des groupements carbonés.

Le Tableau 3-1 renferme les différentes valeurs sorties dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$  et de  $\text{Pb}^{56+}$ .

	$\mu$	$\mu_{\text{poisson}}$	$\text{Pf}_{\text{totale}}$	Nb bf/ion <sub>estimé</sub>	Nb bf/ion <sub>calculé</sub>	Fraction
$\text{Pb}^{72+}$	1,72	1,47	0,164	0,54	0,56	0,32
$\text{Pb}^{56+}$	0,78	0,68	0,13	0,2	0,24	0,28

**Tableau 3-1 : comparaison entre  $Pb^{72+}$  et  $Pb^{56+}$  pour la valeur moyenne de la multiplicité totale mesurée et calculée, pour la probabilité de la fragmentation totale, pour le nombre du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident estimé et calculé, pour la fraction d'ions issus de la fragmentation.**

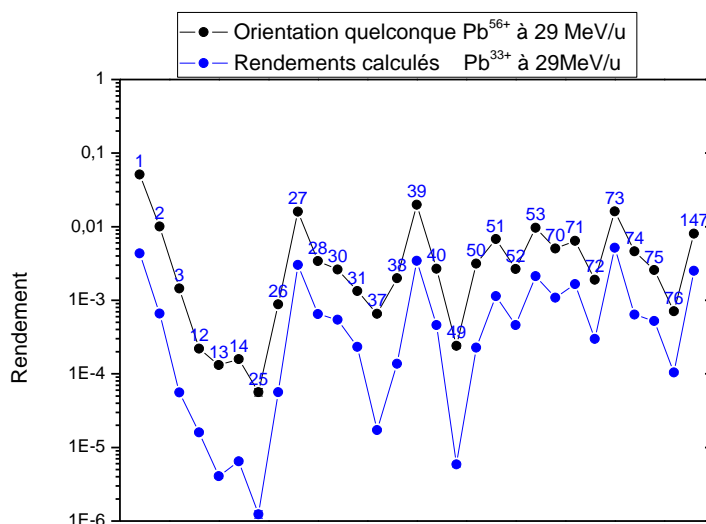
Pour la valeur moyenne de la multiplicité totale, on a une dépendance avec la charge en puissance de  $n$  qui est égale à 3,14, et cette dépendance est la même si on prend la distribution de la multiplicité expérimentale ou celle de Poisson, puisque la fraction d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol a une dépendance faible avec la charge en  $n$  qui est égale à 0,52. La probabilité de la fragmentation totale est proportionnelle à la charge.

Pour le rendement du bruit de fond trouvé dans le spectre de temps de vol, on a une dépendance avec la charge en  $n$  qui est égale 3,64.

### ***b. Etude en fonction de la vitesse***

La comparaison des rendements pour deux vitesses différentes est plus facile si les deux faisceaux incidents ont la même charge. Or comme nous l'avons déjà écrit, nous n'avons pas pu réaliser la partie de l'expérience à basse énergie correspondant aux ions proches de l'équilibre de charge avec  $q=59+$ . Pour comparer l'effet de vitesse entre le faisceau de  $Pb$  à 29MeV/u et à 6,5MeV/u, nous avons calculé les rendements pour un faisceau virtuel d'ions de  $Pb^{33+}$  à 29 MeV/u à travers les rendements dans le cas du  $Pb^{56+}$  à 29 MeV/u, en utilisant la dépendance en charge trouvée dans la section précédente. On a choisi la charge 33+ puisqu'elle est la charge à l'entrée du cristal à basse énergie. Il faut noter que si on avait un faisceau réel de  $Pb^{33+}$  incidents à 29MeV/u, les rendements mesurés ne seraient pas les mêmes que ceux qu'on a calculés car cette charge étant très loin de la charge à l'équilibre, on aurait également une influence des échanges de charge en surface.

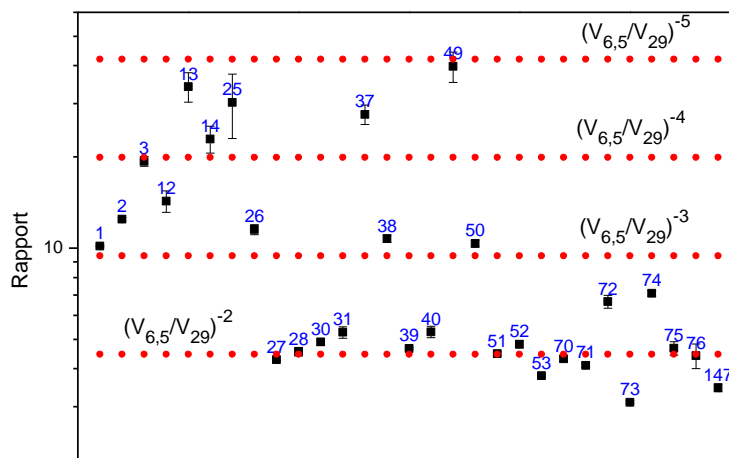
La Figure 3-17 montre les rendements mesurés dans le cas du  $Pb^{56+}$  à 29MeV/u (cercles noirs) et les rendements calculés pour un faisceau virtuel de  $Pb^{33+}$  à 29MeV/u.



**Figure 3-17: rendements de différentes masses émises (les masses sont en label) dans le cas d'une orientation quelconque : ions  $Pb^{56+}$  incidents (mesurés, cercles noirs) et ions  $Pb^{33+}$  incidents (calculés, cercles bleus) à 29 MeV/u.**



La Figure 3-18 montre le rapport entre les rendements mesurés dans le cas de  $Pb^{28+}$  à 6,5 MeV/u et les rendements calculés dans le cas du faisceau virtuel de  $Pb^{33+}$  à 29 MeV/u.



**Figure 3-18:** rapports entre les rendements dans le cas de  $Pb^{28+}$  (mesurés à 6,5 MeV/u) et ceux dans le cas d'ions  $Pb^{33+}$  (calculés à 29 MeV/u). Les droites indexées  $(V_{6,5}/V_{29})^{-n}$  représentent les rapports des vitesses à diverses puissances entières -n.

Les droites horizontales indiquent la valeur de rapport des deux vitesses incidentes avec une certaine puissance  $(V_{6,5}/V_{29})^{-n}$  et  $n=2, 3, 4, 5$ .

La dépendance en vitesse estimée suit qualitativement la même dépendance qu'avec la charge puisqu'on a retrouvé les mêmes familles. Cependant les valeurs des puissances sont plus petites. Il faut noter que la charge 33+ à basse énergie change très rapidement, et il est très probable qu'elle augmente dans la région contribuant à l'émission ionique à l'intérieur du cristal. Donc on peut supposer que la dépendance avec la vitesse doit être plus faible que ce qu'on a calculé.

Maintenant si on calcule pour le même faisceau virtuel la valeur moyenne de la multiplicité totale en utilisant la dépendance en  $Q^3$ , on trouve la valeur 0,16 pour  $Pb^{33+}$  à partir de la valeur expérimentale dans le cas de  $Pb^{56+}$  et la valeur 0,14 à partir de la valeur moyenne de la distribution de Poisson correspondante. Pour la probabilité de la fragmentation totale, en utilisant la dépendance en  $Q$ , on trouve 0,076. La fraction d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol est 0,21 d'après la dépendance en  $Q^{0,52}$ . En multipliant cette fraction par la valeur moyenne de la multiplicité totale (0,16) ou à travers la dépendance en charge calculée au dessus, on peut estimer le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol émis par ion incident de  $Pb^{33+}$ , et on trouve 0,034.

Le Tableau 3-2 renferme les différentes valeurs sorties dans le cas de  $Pb^{28+}$  et de  $Pb^{56+}$  et toutes les valeurs calculées pour le  $Pb^{33+}$ .

	$\mu$	$\mu_{\text{poisson}}$	$Pf_{\text{totale}}$	Nb bf/ion <sub>estimé</sub>	Nb bf/ion <sub>calculé</sub>	Fraction
Pb 6,5MeV/u (28+)	0,78	0,51	0,22	0,28	0,32	0,38
Pb 29MeV/u (33+)	0,16 (calculée)	0,14	0,076	0,034	0,034	0,21
Pb 29MeV/u (56+)	0,78	0,68	0,13	0,2	0,24	0,28

**Tableau 3-2: comparaison entre  $Pb^{28+}$  à 6,5MeV/u et  $Pb^{56+}$ ,  $Pb^{33+}$  (faisceau virtuel) à 29MeV/u pour la valeur moyenne de la multiplicité totale mesurée et calculée, pour la probabilité de la fragmentation totale, pour le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident, estimé et calculé, pour la fraction d'ions issus de la fragmentation.**

Nous avons trouvé, en comparant les deux systèmes ( $Pb^{28+}$  et  $Pb^{33+}$ ) que la dépendance avec la vitesse de la valeur moyenne de la multiplicité totale mesurée est en puissance de 2,12 et de puissance 1,73 pour la valeur moyenne de la distribution du Poisson. Par contre pour le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol, on a une dépendance avec la vitesse en puissance de 3 qui est plus grande que celle de la valeur moyenne de la multiplicité.

En conclusion, les rendements, les multiplicités et la fragmentation ont une dépendance plus forte avec la charge qu'avec la vitesse. Pour les rendements, cette dépendance varie d'une espèce à une autre. Pour la fragmentation d'ions principaux émis et la multiplicité totale, la dépendance est la même avec la charge, ce qui n'est pas le cas avec la vitesse ; et c'est peut être pourquoi la fraction d'ions constituant le bruit de fond dans le spectre de temps de vol et la probabilité de la fragmentation calculée sont les plus grandes à basse énergie.

## **II. Alignement axial**

Dans cette partie, nous allons présenter l'effet sur l'émission ionique lié à la canalisation suivant l'axe  $\langle 110 \rangle$  des ions Pb pour les trois systèmes. Nous montrerons les effets différentiels sur l'émission ionique entre les ions bien canalisés et les ions mal canalisés ou de fortes pertes d'énergie, et l'effet lié à un faible désalignement du faisceau par rapport à l'axe  $\langle 110 \rangle$  sur l'émission ionique.

### **1) Mise en évidence d'un effet lié à la canalisation**

Dans le cas du faisceau de  $Pb^{72+}$ , nous avons choisi les ions de fortes pertes d'énergie parmi les ions d'états de charge 74+, 73+, 72+, 71+, 70+ et 69+. Pour chacun de ces états de charge, nous avons sélectionné les ions qui ont une perte d'énergie plus grande que la perte d'énergie moyenne des ions transmis avec le même état de charge dans le cas d'une orientation quelconque. Pour les ions bien canalisés, nous avons pris les ions qui ont l'état de charge 72+, et qui ont une perte d'énergie normalisée à la perte d'énergie moyenne des ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque comprise entre 0,4 et 0,5.

Dans le cas du faisceau de  $Pb^{56+}$ , nous avons choisi les ions de fortes pertes d'énergie parmi les ions d'états de charge 68+ à 73+, et qui ont une perte d'énergie plus grande que la perte d'énergie moyenne des ions transmis avec le même état de charge dans le cas d'une orientation quelconque. Pour les ions bien canalisés, nous avons pris les ions qui ont l'état de charge 56+, et qui ont une perte d'énergie normalisée comprise entre 0,4 et 0,5.

Dans le cas du faisceau de  $Pb^{28+}$ , nous avons choisi les ions de fortes pertes d'énergie parmi les ions d'états de charge 53+ à 57+, et qui ont une perte d'énergie plus grande que la perte d'énergie moyenne des ions transmis avec la même état de charge dans le cas d'une orientation quelconque. Pour les ions bien canalisés, nous avons pris les ions qui ont l'état de charge 38+ à 41+, et qui ont une perte d'énergie normalisée comprise entre 0,4 et 0,5. Nous avons choisi ces états de charges parce qu'il n'y a pas assez de statistique pour les états de charge inférieurs. C'est pour la même raison que nous avons choisi les ions bien canalisés avec une perte d'énergie normalisée entre 0,4 et 0,5, afin qu'on puisse faire une comparaison entre les trois systèmes.

## *a. L'émission ionique du germanium*

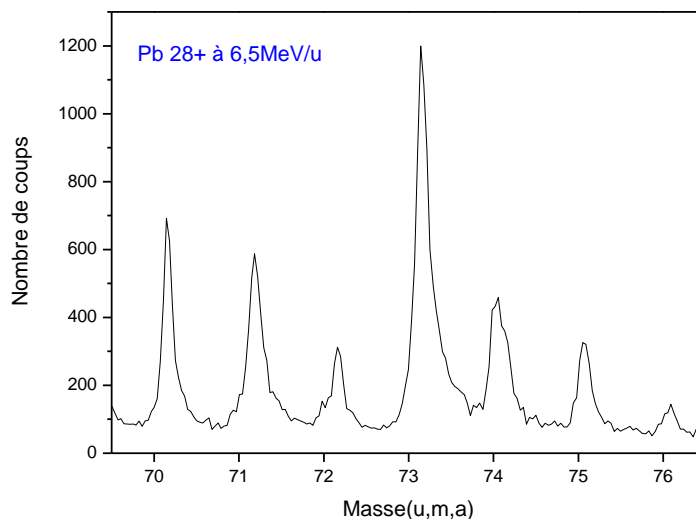
### (i) Extraction des faibles rendements du germanium

Dans la nature, le germanium existe sous la forme de cinq isotopes. Le Tableau 3-3 montre ces isotopes avec leur masse et leur abondance naturelle. Le germanium avec la masse 73,92 est le plus abondant.

Masse	69,92	71,92	72,92	73,92	75,92
abondance	20,52%	27,43%	7,76%	36,54%	7,76%

**Tableau 3-3 : les 5 isotopes de germanium avec leur masse (unité u.m.a.) et leur abondance naturelle**

La Figure 3-19 montre un spectre de temps de vol calibré en masse dans la région des isotopes de germanium. Ce spectre est donné par le pixel 27 du détecteur LAG, qui a le plus de statistique. Ce spectre a été obtenu dans le cas du faisceau de  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u incident suivant une orientation quelconque (random). On constate que le pic avec la masse 73 est le plus abondant alors que l'isotope du germanium de masse 73 est le moins abondant. Donc on est très loin de la distribution isotopique du germanium et donc notre spectre est dominé par l'émission ionique des espèces déposées dans la couche amorphe.



**Figure 3-19: Spectre de temps de vol dans la région des isotopes de germanium, calibré en masse (pixel 27) ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u, orientation quelconque).**

Nous avons fait plusieurs essais pour tenter de trouver le signal du germanium dans nos spectres.

Nous avons pensé à soustraire à ce spectre obtenu hors canalisation le spectre obtenu avec les ions bien canalisés. Notre idée était basée sur le fait que le dépôt d'énergie des ions bien canalisés est faible sous la couche amorphe, et que la majorité de l'émission ionique dans ce cas là vient de l'effet du dépôt de l'énergie dans la couche amorphe. Avec cette soustraction, on pourrait mettre en évidence le dépôt de l'énergie sous la couche amorphe en fortifiant, s'il y en a, le signal de germanium. Le résultat de cette soustraction a été négatif. Le

pic de la masse 73 est toujours le plus grand, et on est encore très loin de la distribution isotopique du germanium.

Nous avons conditionné nos spectres avec une grande multiplicité ( $> 6$ ). En effet, il est plus probable d'avoir du germanium dans des événements de grande multiplicité car on peut penser que lorsqu'un ion germanium franchit la couche amorphe, il dépose de l'énergie qui va provoquer de nouveau de l'émission ionique. Surtout, nous pensions que l'explosion coulombienne pouvait être associée à de fortes multiplicités, accompagnées de forts rendements en ions germanium. Mais comme nous l'avons déjà écrit, le niveau du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par rapport aux différents pics de masses augmente lorsqu'on sélectionne les événements de grande multiplicité. Donc on n'a pas favorisé le signal du germanium avec cette méthode à cause de l'augmentation du niveau du bruit de fond.

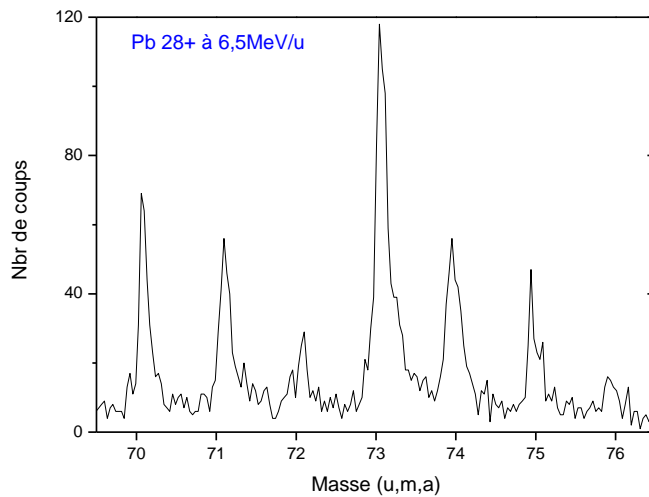
Nous avons aussi regardé les événements qui renferment au minimum deux masses qui correspondent aux isotopes de germanium. Avec cette méthode, on favorise le signal du germanium associé à une explosion coulombienne. Mais comme les autres essais, celui-ci a été négatif.

Nous avons fait ces essais pour les trois systèmes à basse énergie et à haute énergie et pour les trois cas, les ions de fortes pertes d'énergie, les ions dans le cas random et les ions bien canalisés. Nous avons fait d'autres essais basés aussi sur des coïncidences. Nous ne les décrivons pas ici, mais on n'a pas pu isoler le germanium.

Après ces différents essais, nous avons essayé de regarder nos spectres calibrés en masse, de façon plus détaillée, en profitant de la résolution en masse du LAG. Les pics correspondant aux masses des isotopes du germanium sont dus principalement à divers ions qui proviennent des impuretés de la surface. On va admettre qu'il y a du germanium dans ces pics, mais en faible quantité. Dans chaque pic, le germanium doit contribuer aux masses faibles, et les impuretés aux masses élevées puisqu'elles renferment probablement des atomes de carbone. La différence en masse entre les deux composantes doit être supérieure ou égale à 0,08 u.m.a. Cette valeur est proche de la résolution en masse du LAG pour un seul pixel, qui est égale à 0,1 u.m.a (Chapitre 2 :B -II. 4)e).

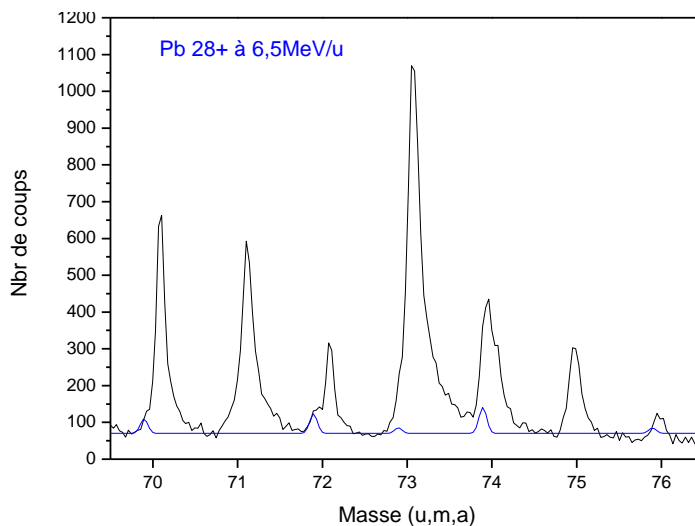
La Figure 3-20 montre un spectre de temps de vol dans la région du germanium, calibré en masse pour le pixel 26. Ce spectre est associé aux ions de fortes pertes d'énergie pour le faisceau  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u, légèrement désaligné avec l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Nous n'avons pas pris le spectre correspondant lorsque le faisceau est bien aligné avec l'axe parce qu'il n'y a pas assez de statistique.

On voit bien que le pic 72 est formé de deux composantes. La différence entre les deux composantes en masse est 0,14 u.m.a. Nous avons attribué le premier pic à l'isotope de germanium de masse 71,92 u.m.a.



**Figure 3-20:** spectre de temps de vol dans la région du germanium, calibré en masse (pixel 26) ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u, alignement axial, ions de forte perte d'énergie).

Pour avoir plus de statistique, nous avons sommé plusieurs pixels. Mais avant de les sommer, nous avons recalé en temps les spectres des pixels les uns par rapport aux autres en utilisant la position du pic de l'hydrogène. Les pixels que nous avons sommés sont : 18, 19, 20, 25, 26, 27, 28, 34, 35 et 36. Ces pixels se trouvent au centre du LAG et ce sont ceux qui ont le plus de statistique.



**Figure 3-21:** Même spectre de temps de vol dans la région du germanium que celui de la figure 74, après sommation de différents pixels du LAG calibrés en masse, avec un fit gaussien pour les pics des isotopes de germanium ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).

La Figure 3-21 montre un spectre de temps de vol pour les pixels sommés dans la région du germanium. On voit toujours le dédoublement du pic 72 et on voit aussi une base au pied du pic 70 vers les faibles masses. Alors comme on voit sur la figure, nous avons fait un ajustement à l'aide de gaussiennes. Nous avons utilisé la résolution en masse comme largeur

de la gaussienne, et, en tenant compte des pourcentages des différents isotopes, nous avons calculé les aires des différentes gaussiennes en utilisant l'aire de la partie gauche du pic 72. La position des isotopes de germanium a été calculée à partir de la position du premier pic de la masse 72. On constate que l'ajustement prévoit toujours la présence des isotopes du germanium vers les faibles masses. En particulier, la largeur du pic de masse 74 peut être en partie due à la présence de cet isotope qui est le plus abondant.

Si on admet que ce qu'on voit est du germanium, alors le rendement du germanium estimé est  $(2,3 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie et  $(4,7 \pm 0,2) \times 10^{-4}$  dans le cas des ions random. Pour les ions bien canalisés, nous n'avons pas trouvé de germanium. La variation de ces rendements, entre les ions de forte perte d'énergie, les ions dans le cas random et les ions bien canalisés, montre que ce qu'on voit n'est pas dû à une erreur expérimentale. Cette variation va dans le sens attendu. Par contre ces rendements sont très petits par rapport aux rendements présentés auparavant. Cela montre que l'émission ionique du germanium est très faible, en tout cas celle que notre dispositif détecte, et c'est pourquoi nous n'avons pas pu faire une étude en fonction du taux de perte d'énergie. Toutefois, cette forte variation sur plus d'un ordre de grandeur du rendement d'émission des ions Ge<sup>+</sup> est nettement supérieure à celle de toutes les autres espèces émises, ce qui est compréhensible puisque l'émission d'ions germanium doit résulter d'un dépôt d'énergie principalement dans la partie cristalline et pas dans la couche amorphe (à l'exception de l'oxyde).

A haute énergie, nous avons fait le même fit. Par contre, la résolution est moins bonne qu'à basse énergie parce qu'on a le problème de déclenchement du détecteur à électrons qui donne le signal Start (Chapitre 2 :B -II. 1)). Donc la majorité des pics est formée de deux composantes. Pour surmonter cette difficulté et améliorer la résolution, nous avons conditionné notre spectre avec une des deux composantes du pic de l'hydrogène puisque le rendement de l'hydrogène est le plus grand. Donc nous avons sélectionné les événements de multiplicité >1 avec au moins un ion d'hydrogène et suivant si le signal Start est avancé ou reculé, nous avons sélectionné deux types de spectre de temps de vol que nous avons ensuite recalés en recalant les deux composantes du pic de l'hydrogène. Avec cette méthode, nous avons retrouvé la résolution en temps qu'on a à basse énergie, mais nous avons perdu beaucoup de statistique puisqu'on a de l'hydrogène seulement dans 20% des événements.

Dans le cas de Pb<sup>72+</sup>, nous avons trouvé pour les rendements d'émission de germanium  $(2,8 \pm 0,3) \times 10^{-3}$  dans le cas des ions de forte perte d'énergie, et  $(1 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  dans le cas d'une orientation quelconque. Pour le Pb<sup>56+</sup> nous n'avons pas estimé le taux d'émission du germanium.

## (ii) Les différentes contraintes à l'émission du germanium

Avec les ions lourds rapides, il y a quelques expériences qui ont mis en évidence la formation des défauts dans des semi-conducteurs tels que le germanium [23-28]. Le seuil de création des traces dans le germanium pour les ions est autour de 40keV/nm (Chapitre 2 :B -I. 1)).

Dans notre expérience, les ions de fortes pertes d'énergie dépassent largement ce seuil avec leur taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal qui est plus grand que 100keV/nm. Alors pourquoi n'avons nous vu que très peu de germanium ?

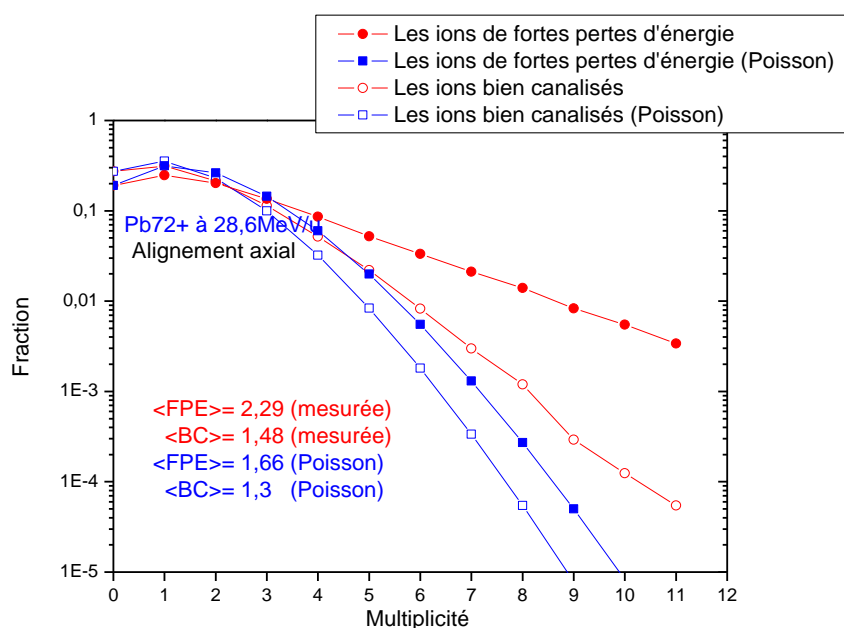
Peut-être le germanium est-il neutralisé à l'intérieur sous la couche amorphe. Cela nécessite que le germanium sorte après  $10^{-15}$  sec (le temps de l'écrantage de la charge induite

dans le milieu). Si c'est vrai, alors on doit exclure l'hypothèse de l'explosion coulombienne qui nécessite un temps plus petit que  $10^{-15}$  sec.

Le germanium est peut-être arrêté ou neutralisé dans la couche amorphe.

Enfin il y a aussi une contrainte expérimentale due à la géométrie de la détection du LAG. En effet, la surface du détecteur est de 25x25 mm, et il est situé à une distance de 40 cm de la cible. Si un ion germanium émis de la surface a plus que 5 eV d'énergie transverse il ne sera pas détecté par le LAG. Cette contrainte est liée à la surface totale des pixels et à l'intensité du champ électrique utilisé pour extraire les ions. Donc il est possible qu'avec la géométrie de notre système de détection d'ions secondaires on ne puisse pas voir les ions germanium produits par l'explosion coulombienne d'une rangée  $\langle 110 \rangle$  orientée à  $45^\circ$  de la direction d'extraction des ions secondaires, même si les ions de la rangée sont émis de façon plus ou moins isotrope. Concernant cette possible distribution angulaire très large, associée à une énergie cinétique transverse élevée des ions germanium, nous n'avons pas trouvé de distribution anormale des ions de masse proche du germanium en fonction de la position sur le LAG. Néanmoins la question reste ouverte, et il faudrait concevoir un système de détection de tels ions rapides avec par exemple un anneau de focalisation afin d'améliorer l'efficacité de détection.

### *b. La distribution de la multiplicité et sa valeur moyenne*



**Figure 3-22: distribution de la multiplicité des ions secondaires: expérimentale (cercles rouges), calculée (distribution de Poisson de même  $P(0)$  que la distribution mesurée) (carrés bleus), les symboles pleins correspondent aux ions de fortes pertes d'énergie et les symboles vides aux ions bien canalisés ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

La Figure 3-22 montre les distributions de la multiplicité des ions secondaires mesurées (cercles rouges) et calculées par une distribution de Poisson (carrés bleus) de même  $P(0)$ .

Les deux courbes avec les symboles pleins correspondent aux ions de fortes pertes d'énergie. Les valeurs moyennes correspondantes sont 2,29 (mesurée) et 1,66 (Poisson).

Les deux courbes avec les symboles vides correspondent aux ions bien canalisés. Les valeurs moyennes correspondantes sont 1,48 (mesurée) et 1,3 (Poisson).

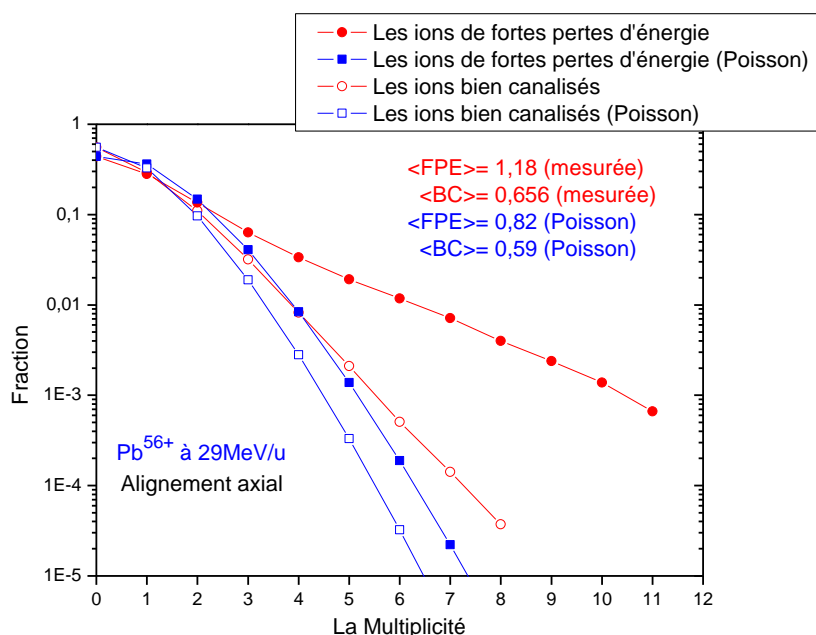
Les valeurs moyennes de la multiplicité dans le cas d'une orientation quelconque sont 1,72 (mesurée) et 1,47 (Poisson).

Comme on voit pour les deux cas (distribution mesurée et distribution de Poisson), les ions de fortes pertes d'énergie ont la multiplicité moyenne la plus élevée et les ions bien canalisés la plus faible. L'écart entre les deux distributions (mesurée et Poisson) est plus grand dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie, et il est très faible dans le cas des ions bien canalisés.

La contribution à l'émission ionique du dépôt d'énergie en couche amorphe de surface est la même pour tous les ions incidents. Donc la différence observée entre le cas d'ions bien canalisés et le cas d'ions de fortes pertes d'énergie vient de la différence du dépôt d'énergie par les ions incidents à l'entrée du cristal, qui est due à la densité électronique rencontrée. La charge incidente est la même dans les deux cas (la charge incidente est la charge à l'équilibre), donc elle n'intervient pas dans l'explication de cet effet différentiel.

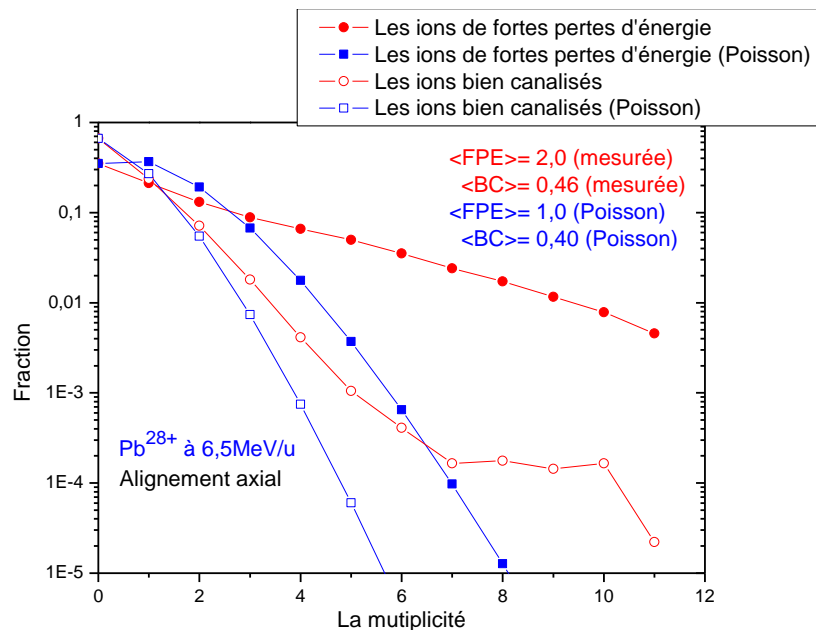
La variation de l'énergie transférée aux électrons du cristal sous la couche amorphe pour une certaine profondeur conduit donc à la fois à :

- la variation du nombre d'ions secondaires émis, d'après l'écart entre la distribution de Poisson des ions de fortes pertes d'énergie et celle des ions bien canalisés ;
- la variation de l'énergie d'excitation des ions moléculaires émis, car ceux-ci se fragmentent plus dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie d'après l'écart à la distribution de Poisson.





**Figure 3-23: distributions de multiplicité des ions secondaires: expérimentale (cercles rouge), calculée (distribution de Poisson de même  $P(0)$  que la distribution mesurée) (carrés bleus), les symboles pleins correspondent aux ions de fortes pertes d'énergie et les symboles vides aux ions bien canalisés ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).**

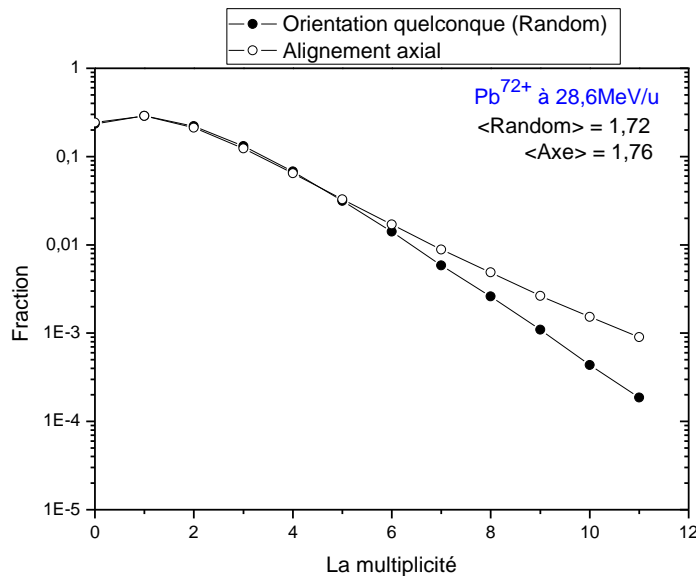


**Figure 3-24: distribution de la multiplicité des ions secondaires : expérimentale (cercles rouges), calculée (distribution de Poisson de même  $P(0)$  que la distribution mesurée) (carrés bleus), les symboles pleins correspondent aux ions de fortes pertes d'énergie et les symboles vides aux ions bien canalisés ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).**

Les deux Figure 3-23 et Figure 3-24 montrent la distribution de la multiplicité expérimentale et la distribution de Poisson correspondante avec la même valeur moyenne (le même  $P(0)$ ) pour les deux autres systèmes. Comme dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$ , on voit un effet différentiel sur la multiplicité des ions secondaires détectés entre les ions bien canalisés et les ions de forte perte d'énergie ; par contre, il est plus fort à basse énergie que pour les deux systèmes à haute énergie. Cela est dû à l'évolution rapide de la charge. En effet, les ions  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u étant très loin de la charge à l'équilibre et les sections efficaces d'échange de charge étant très élevées à faible vitesse, leur état de charge varie très rapidement, ce qui n'est pas le cas pour les deux autres systèmes à haute énergie. Dans ce cas l'état de charge d'ions de fortes pertes d'énergie va augmenter plus rapidement que l'état de charge des ions bien canalisés à l'entrée du cristal. Dès la couche amorphe d'entrée, la charge des ions incidents va évoluer. Cependant, au-delà de la couche amorphe, l'évolution de la charge des ions bien canalisés sera fortement ralentie, sinon stoppée, car ils rencontrent de faibles densités électroniques. A l'inverse, les ions de forte perte d'énergie subiront de nombreux échanges de charge car ils voyageront au voisinage des rangées d'atomes, où la probabilité d'ionisation et de capture est très grande. Et donc, l'augmentation de la charge d'ions de fortes pertes d'énergie induit elle aussi une augmentation du dépôt d'énergie qui s'ajoute à l'augmentation due à la seule densité électronique rencontrée.

Nous avons montré l'effet du dépôt d'énergie sous la couche amorphe sur la multiplicité en sélectionnant des trajectoires bien définies d'ions canalisés le long de l'axe

$\langle 110 \rangle$ . Maintenant, nous allons présenter la distribution de la multiplicité des ions secondaires pour l'ensemble des ions canalisés le long de l'axe  $\langle 110 \rangle$ . Pour cela nous nous intéressons à la distribution de multiplicité pour l'ensemble des ions transmis du faisceau incident aligné suivant l'axe  $\langle 110 \rangle$ , et nous la comparons sur la Figure 2-25 avec celle qui a été obtenue pour l'ensemble des ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque.



**Figure 3-25: distributions de multiplicité pour l'ensemble des ions transmis dans le cas d'alignement axial (cercles vides) et dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins) ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u).**

La courbe avec les cercles pleins correspond aux ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque. La valeur moyenne de cette distribution est 1,72.

La courbe avec les cercles vides correspond aux ions transmis dans le cas d'alignement axial. La valeur moyenne de cette distribution est 1,76.

Cette faible différence entre ces deux valeurs moyennes est due aux quelques événements de grande multiplicité qu'on a en plus dans le cas d'alignement axial. Elle n'est clairement observable que grâce à l'échelle semi-logarithmique.

Tant que la distribution du faisceau incident dans le plan transverse de l'axe  $\langle 110 \rangle$  reste uniforme, autrement dit, avant que le faisceau commence à se focaliser par l'effet du potentiel des rangées d'atomes, alors la perte d'énergie moyenne sur cette distance est la même si les ions sont canalisés dans l'axe  $\langle 110 \rangle$  et s'ils sont incidents suivant une direction quelconque, car la densité électronique moyenne rencontrée est la même dans les deux cas ; autrement dit, dans le cas de l'alignement axial, la densité électronique rencontrée par les ions de fortes pertes d'énergie, qui est très grande, est compensée par la faible densité électronique rencontrée par les ions bien canalisés.

Comme la profondeur qui contribue à l'émission ionique en surface est inférieure à la distance nécessaire à la redistribution du flux par l'effet de canalisation, alors on s'attendrait aussi à avoir une compensation entre les ions de fortes pertes d'énergie, qui ont une grande valeur moyenne de la multiplicité, et les ions bien canalisés qui ont une faible valeur moyenne

de la multiplicité. Ce n'est pas le cas comme on le voit sur la Figure 3-25 : il y a une différence visible entre les deux distributions aux grandes multiplicités. Cette différence est faible, et nous l'avons attribuée à un effet non linéaire sur la variation de la probabilité de fragmentation avec l'énergie transverse des projectiles, comme on va le voir dans les parties suivantes.

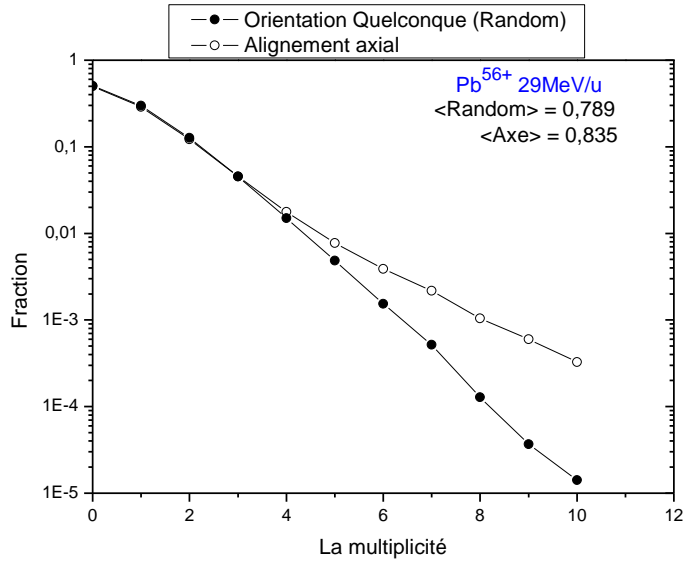


Figure 3-26: distribution de la multiplicité totale pour l'ensemble des ions transmis dans le cas d'alignement axial (cercles vides) et dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins) ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).

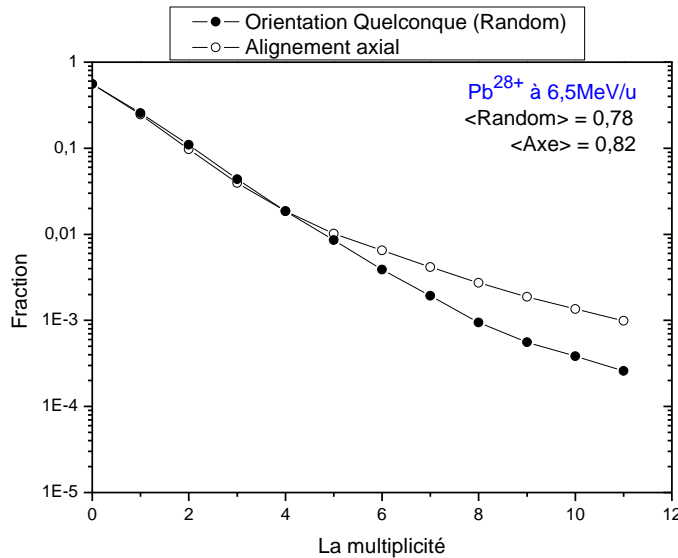
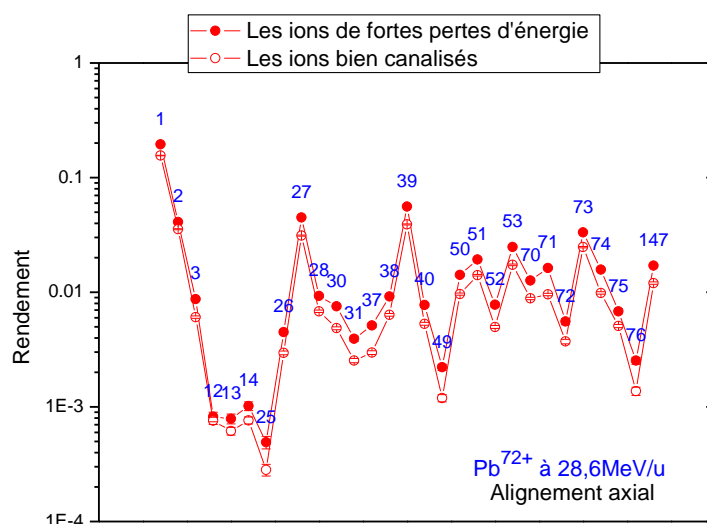


Figure 3-27: distribution de la multiplicité totale pour l'ensemble des ions transmis dans le cas d'alignement axial (cercles vides) et dans le cas d'une orientation quelconque (cercles pleins) ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).

Les deux Figure 3-26Figure 3-27 montrent la distribution d'ions secondaires émis en surface pour l'ensemble des ions transmis pour les deux autres systèmes. Comme dans le cas de  $Pb^{72+}$ , on a une différence entre les deux distributions pour les grandes multiplicités. Cette différence est du même ordre de grandeur.

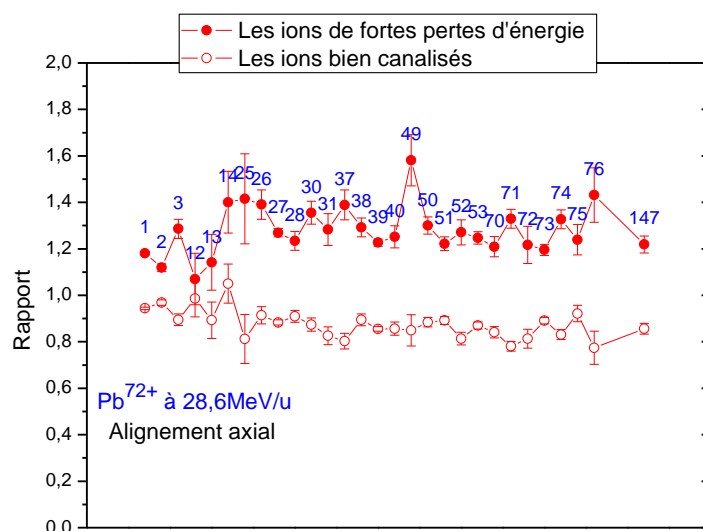
### c. Rendements



**Figure 3-28: rendements de différentes masses émises (les masses sont en label) dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie (cercles pleins) et d'ions bien canalisés (cercles vides) ( $Pb^{72+}$  à 28,6 MeV/u).**

La Figure 3-28 montre les rendements absolus pour différentes masses émises, les mêmes que nous avons choisies dans le cas d'une orientation quelconque. La courbe avec les cercles pleins correspond aux ions de fortes pertes d'énergie et celle avec les cercles vides correspond aux ions bien canalisés. Parmi ces différentes masses choisies, il y a les masses 147, 73, 39, 27 qui ont des pics dissymétriques (c.à.d. qu'une partie s'est fragmentée durant la phase d'accélération). Le choix de l'échelle logarithmique permet d'observer que, pour des rendements qui varient sur deux ordres de grandeur d'une masse à une autre, les différences entre les rendements pour les ions bien et mal canalisés sont au plus d'un facteur 2.

Pour comparer plus finement les deux courbes, nous les avons normalisées aux rendements correspondants dans le cas d'une orientation quelconque (Figure 3-29), et représentés avec une échelle linéaire. Dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie, les rendements ont augmenté en moyenne d'un facteur compris entre 1,2 et 1,5, et pour les ions bien canalisés, ils ont diminué d'un facteur compris entre 0,8 et 1.

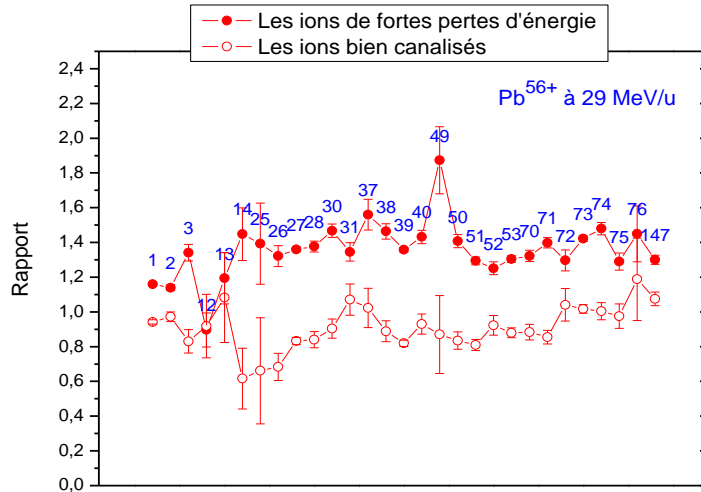


**Figure 3-29: rendements de différentes masses émises normalisés au cas d'une orientation quelconque. Les ions de fortes pertes d'énergie (cercles pleins) et les ions bien canalisés (cercles vides) ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

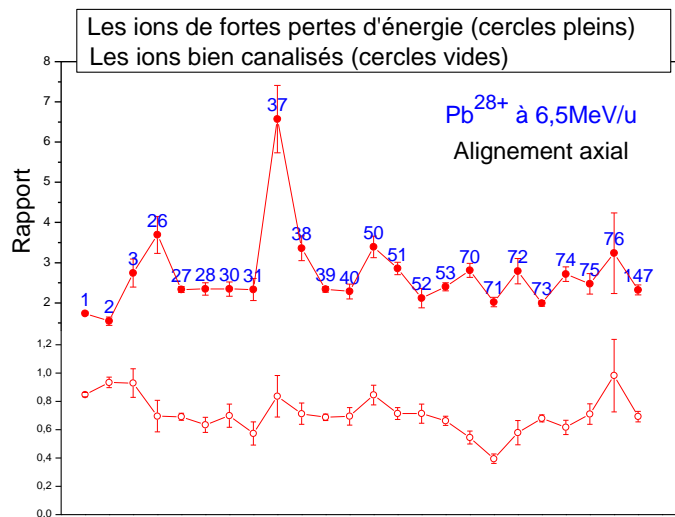
Globalement, dans ce cas des ions incidents  $\text{Pb}^{72+}$ , les rendements des différentes masses varient en première approximation de la même manière avec le dépôt d'énergie sous la couche amorphe (augmentation de typiquement 30% à forte perte d'énergie, réduction de 15% à faible perte d'énergie), ce qui représente une variation de l'ordre de 50% lorsque le dépôt d'énergie augmente de plus d'un facteur 2 entre les deux sélections.

Notons toutefois les particularités des ions  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_2^+$  et  $\text{H}_3^+$ , qui sont d'une part très différents entre eux, et d'autre part qui ont les facteurs d'augmentation et de réduction les plus faibles. On peut donc considérer que ces espèces sont peu sensibles au dépôt d'énergie sous la couche amorphe (en particulier les ions  $\text{H}_2^+$ ).

Par ailleurs, si on observe plus en détail ces données, on retrouve une faible variation périodique avec une augmentation (respectivement diminution) des rendements pour de fortes (respectivement faibles) pertes d'énergie avec les groupements moléculaires carbonés  $M=25-26$ ,  $M=37-38$ ,  $M=49-50$ . Ceci met en évidence le rôle du dépôt d'énergie sous la couche amorphe, qui joue plus ou moins différemment selon les espèces détectées.



**Figure 3-30: rendements de différentes masses émises (les masses sont en label) dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie (cercles pleins) et d'ions bien canalisés (cercles vides) ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).**



**Figure 3-31: rendements de différentes masses émises (les masses sont en label) dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie (cercles pleins) et d'ions bien canalisés (cercles vides) ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).**

Dans le cas de  $\text{Pb}^{56+}$  (Figure 3-30), pour les ions de forte perte d'énergie, les rendements ont augmenté en moyenne d'un facteur compris entre 1,2 et 1,5 et pour les ions bien canalisés, ils ont diminué d'un facteur compris entre 0,8 et 1. Ils varient en moyenne de la même manière avec le dépôt d'énergie sous la couche amorphe sauf pour les ions  $\text{H}^+$  et  $\text{H}_2^+$ , qui ont un facteur d'augmentation et un facteur de réduction les plus faibles. Les incertitudes statistiques ne permettent pas de conclure sur les comportements périodiques mis en évidence dans le cas des ions 72+ incidents pour les groupements carbonés (masses 25-27, 37-39, 49-51).

Dans le cas de  $Pb^{28+}$  à basse énergie (**Figure 3-31**), pour les ions de forte perte d'énergie, les rendements ont augmenté en moyenne d'un facteur compris entre 2 et 4 et pour les ions bien canalisés, ils sont diminués d'un facteur compris entre 0,6 et 1.

Comme pour les multiplicités, l'effet différentiel est plus grand à basse énergie. De plus, l'augmentation des rendements normalisés, dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie varie fortement d'une masse à une autre. Les masses 26, 38 et 50 (en unité u.m.a.), qui sont décalées successivement d'une masse de 12, ont un facteur d'augmentation proche de 3,5. La masse 37 a un facteur d'augmentation proche de 7, (les masses 25 et 49, qui sont décalées par rapport à la masse 37 de multiples de 12, n'ont pas été reportées en raison des trop grandes barres d'erreur). On retrouve donc bien, de façon amplifiée ici, le comportement particulier des groupements carbonés (masses 25-27, 37-39, 49-51). Il faut noter aussi que les pics correspondant à ces masses dans le spectre de temps de vol sont symétriques, c'est-à-dire dire que les rendements absolus de ces masses ne sont pas affectés par la fragmentation durant la phase d'accélération. Aussi il faut noter que ces masses sont très sensibles à la charge (**Figure 3-18**).

#### ***d. La fragmentation des principales espèces émises***

Pour l'alignement axial, nous avons aussi estimé le nombre d'ions issus de la fragmentation pendant la phase d'accélération qui n'est autre que le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol. Nous avons fait cette estimation pour le cas d'ions de fortes pertes d'énergie uniquement. Pour les ions bien canalisés, la méthode suivie estime mal le bruit de fond du spectre de temps de vol parce que il n'y a pas assez de statistique d'une part, et d'autre part la valeur moyenne de la multiplicité des ions secondaires est faible ; mais le rapport entre les pics des différentes masses émises et le niveau du bruit de fond dans le spectre de temps de vol est le plus faible dans le cas d'ions bien canalisés (ceci est vrai pour les trois systèmes).

Le Tableau 3-4 donne les valeurs des différents résultats dans le cas de  $Pb^{72+}$ .

$Pb^{72+}$ 29MeV/u	$\mu$	$\mu_{\text{poisson}}$	$Pf_{\text{totale}}$	Nb bf/ion <sub>estimé</sub>	Nb bf/ion <sub>calculé</sub>	Fraction
Ions de fortes pertes d'énergie	2,29	1,66	0,22	0,75	0,99	0,38
Ions transmis en orientation quelconque	1,72	1,47	0,164	0,54	0,56	0,32
Les ions bien canalisés	1,48	1,3	0,12		0,41	0,28

**Tableau 3-4: comparaison entre les ions de fortes pertes d'énergie, les ions bien canalisés et les ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque pour la valeur moyenne de la multiplicité totale mesurée et calculée, pour la probabilité de la fragmentation totale déduite des deux précédentes valeurs, pour le nombre d'ions dans le bruit de fond par ion incident, estimé et calculé, pour la fraction d'ions issus de la fragmentation ( $Pb^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

Le nombre d'ions de bruit de fond dans le spectre de temps de vol estimé par ion incident pour le cas d'ions de fortes pertes d'énergie ( $Pb^{72+}$  à 28,6MeV/u) est 0,75. La valeur de l'incertitude est liée à la méthode utilisée, l'interpolation entre les pics de masse (Chapitre 3 :E -I. 3)).

D'après l'écart entre la distribution de la multiplicité d'ions secondaires et celle de Poisson de même valeur  $P(0)$  on peut calculer la probabilité de la fragmentation des ions émis, et estimer de nouveau le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident (comme nous l'avons fait dans le cas d'une orientation quelconque pour les trois systèmes). Pour les ions de fortes pertes d'énergie, les valeurs calculées sont respectivement 0,22 et 0,99.

La différence entre les deux valeurs du nombre d'ions de bruit de fond estimé par ion incident (entre 0,75 et 0,99) est due au fait que le nombre de projectiles de fortes pertes d'énergie est faible. Par contre dans le cas d'ions transmis en orientation quelconque, la différence est petite mais la statistique est suffisante. Comme nous avons déjà dit, on prend la moyenne de ces deux valeurs qui est égale à 0,87. Donc la fraction des ions du bruit de fond par rapport à l'ensemble d'ions secondaires détectés est 0,38. Donc 38% des ions détectés sont des ions du bruit de fond.

Pour les ions bien canalisés, les valeurs calculées pour la probabilité de la fragmentation et pour le nombre d'ions du bruit de fond par ion incident sont respectivement 0,12 et 0,41. La fraction des ions du bruit de fond par rapport à l'ensemble d'ions secondaires émis est 0,28.

La probabilité de la fragmentation est la plus grande dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie. Cela montre, comme nous avons déjà dit, que le nombre d'ions émis dans des états excités augmente avec le dépôt de l'énergie sous la couche amorphe.

La fraction des ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol est la plus grande dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie. Cela montre que l'augmentation de la multiplicité est due en partie à l'augmentation du nombre d'ions émis (31% d'ions détectés n'ayant pas fragmenté), mais aussi, et de façon dominante, à l'augmentation de la probabilité de fragmentation (facteur 2 environ).

Le Tableau 3-5 donne les valeurs des différents résultats dans le cas de  $\text{Pb}^{56+}$ .

$\text{Pb}^{56+}$ 29MeV/u	$\mu$	$\mu_{\text{poisson}}$	$Pf_{\text{totale}}$	Nb bf/ion <sub>estimé</sub>	Nb bf/ion <sub>calculé</sub>	Fraction
Ions de fortes pertes d'énergie	1,18	0,82	0,22	0,42	0,49	0,38
Ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque	0,78	0,68	0,13	0,2	0,24	0,28
Ions bien canalisés	0,66	0,59	0,10		0,13	0,22

**Tableau 3-5: comparaison entre les ions de fortes pertes d'énergie, les ions bien canalisés et les ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque pour la valeur moyenne de la multiplicité totale, mesurée et calculée, pour la probabilité de la fragmentation totale déduite des deux précédentes valeurs, pour le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident, estimé et calculé, pour la fraction d'ions issus de la fragmentation ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).**

Dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u), le nombre d'ions de bruit de fond estimé par ion incident est 0,42.

La probabilité de la fragmentation des ions émis et le nombre d'ions du bruit de fond par ion incident (calculés à partir de l'écart entre la distribution de la multiplicité des ions



secondaires et celle de Poisson) sont respectivement 0,22 et 0,49. La fraction d'ions du bruit de fond par rapport à l'ensemble des ions secondaires émis est donc 0,38.

Pour les ions bien canalisés, les valeurs calculées pour la probabilité de la fragmentation et pour le nombre d'ions du bruit de fond émis par ion incident sont respectivement 0,10 et 0,13. La fraction d'ions du bruit de fond par rapport à l'ensemble des ions secondaires émis est 0,22. On voit que la variation de la charge incidente a peu d'effet sur la fraction d'ions du bruit de fond et la probabilité de la fragmentation.

Le Tableau 3-6 donne les valeurs des différents résultats dans le cas du faisceau de  $\text{Pb}^{28+}$ .

$\text{Pb}^{28+}$ 6,5MeV/u	$\mu$	$\mu_{\text{poisson}}$	$Pf_{\text{totale}}$	Nb bf/ion <sub>estimé</sub>	Nb bf/ion <sub>calculé</sub>	Fraction
Les ions de fortes pertes d'énergie	2,0	1,0	0,42	0,98	1,28	0,56
Les ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque	0,78	0,51	0,22	0,28	0,32	0,38
Les ions bien canalisés	0,46	0,4	0,12		0,10	0,25

**Tableau 3-6: comparaison entre les ions de fortes pertes d'énergie, les ions bien canalisés et les ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque pour la valeur moyenne de la multiplicité totale, mesurée et calculée, pour la probabilité de la fragmentation totale déduite des deux précédentes valeurs, pour le nombre d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par ion incident, estimé et calculé, pour la fraction d'ions issus de la fragmentation ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).**

Dans le cas des ions de forte perte d'énergie, le nombre d'ions de bruit de fond estimé par ion incident est 0,98. La probabilité de fragmentation et le nombre d'ions du bruit de fond par ion incident (calculés à partir de l'écart entre la distribution de la multiplicité des ions secondaires et celle de Poisson) sont respectivement 0,42 et 1,28. La fraction d'ions du bruit de fond dans le spectre de temps de vol par rapport à l'ensemble d'ions secondaires émis est donc 0,56.

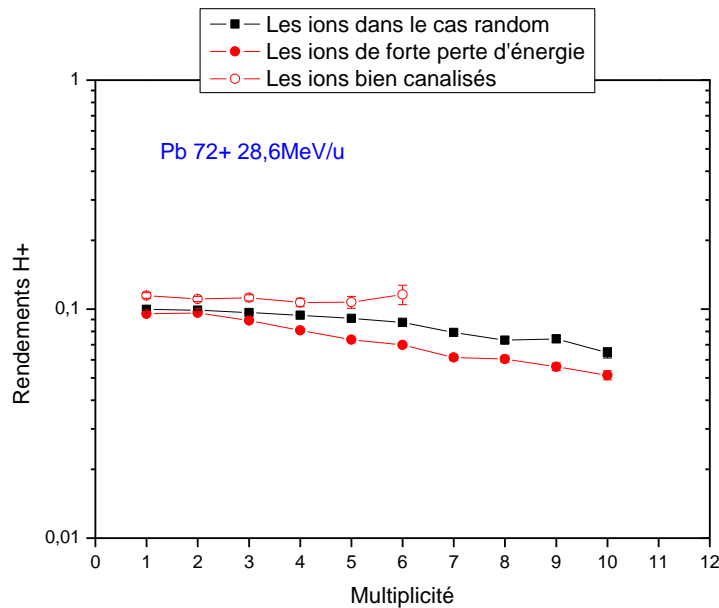
Pour les ions bien canalisés, les valeurs calculées pour la probabilité de la fragmentation et pour le nombre d'ions du bruit de fond émis par ion incident sont respectivement 0,12 et 0,10. La fraction d'ions du bruit de fond par rapport à l'ensemble des ions secondaires est 0,22.

L'écart entre les deux valeurs moyennes de la multiplicité (mesurée et Poisson), dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie est plus grand à basse énergie que pour les deux systèmes à haute énergie. C'est pourquoi la probabilité de fragmentation calculée et la fraction d'ions du bruit de fond sont les plus grandes dans ce cas-là. Donc, à basse énergie, le nombre d'ions émis dans un état excité est plus grand qu'à haute énergie, et l'augmentation de la multiplicité moyenne est due principalement à la fragmentation.

### ***e. Rendements d'hydrogène en fonction de la multiplicité***

Les Figure 3-32, Figure 3-33 et Figure 3-34 montrent la fraction des ions hydrogène en fonction de la multiplicité respectivement dans le cas du faisceau de  $\text{Pb}^{72+}$ ,  $\text{Pb}^{56+}$  et  $\text{Pb}^{28+}$ , ce qui donne une idée du poids de l'hydrogène.

Dans le cas du faisceau de  $\text{Pb}^{72+}$ , la fraction d'hydrogène, ou la probabilité d'avoir un hydrogène lorsqu'on a un ion émis ou deux ions émis..., est restée constante dans le cas des ions bien canalisés. Par contre cette fraction ou cette probabilité a diminué dans le cas random et encore plus pour les ions de forte perte d'énergie.



**Figure 3-32: rendements des ions hydrogène (par ion détecté) en fonction de la multiplicité ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u)**

L'écart entre la distribution de la multiplicité expérimentale et celle de Poisson est le plus faible dans le cas des ions bien canalisés et le plus fort dans le cas des ions de forte perte d'énergie (voir Figure 3-22), et cet écart augmente avec la multiplicité. Comme nous avons déjà dit, cet écart reflète la fragmentation des ions émis. Donc la fraction de l'hydrogène a diminué lorsque la probabilité de fragmentation a augmenté, autrement dit lorsque le nombre du bruit de fond dans le spectre de temps de vol a augmenté.

Dans le cas de  $\text{Pb}^{56+}$ , on a presque le même comportement que dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$  pour les ions bien canalisés (même raison). Par contre pour les ions dans le cas random et les ions de forte perte d'énergie, la fraction de l'hydrogène diminue plus rapidement que dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$ . Sachant que la probabilité de fragmentation est presque la même dans les deux cas, cette différence peut donc être due au fait que le rendement absolu de l'hydrogène pour le  $\text{Pb}^{56+}$  (~ 5-8%) est beaucoup plus faible que dans le cas de  $\text{Pb}^{72+}$  (15-19%).

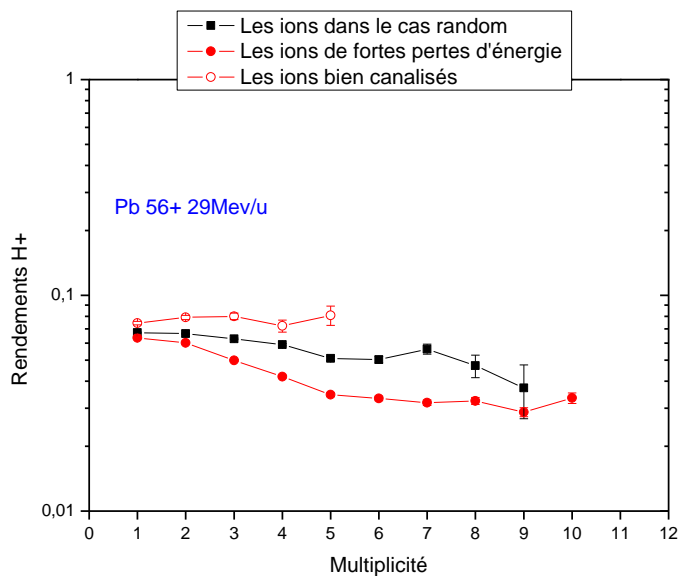


Figure 3-33: rendements des ions hydrogène (par ion détecté) en fonction de la multiplicité ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u)

Dans le cas de  $\text{Pb}^{28+}$ , La fraction d'hydrogène reste presque constante pour les ions bien canalisés, comme pour les deux autres systèmes. Pour les ions de fortes pertes d'énergie et les ions random, cette fraction descend plus rapidement que dans le cas des deux autres systèmes puisque la probabilité de la fragmentation et le nombre d'ions de bruit de fond sont les plus grands à basse énergie. En plus cette fraction atteint un minimum puis elle remonte. Cela peut être un signe de la multi-fragmentation.

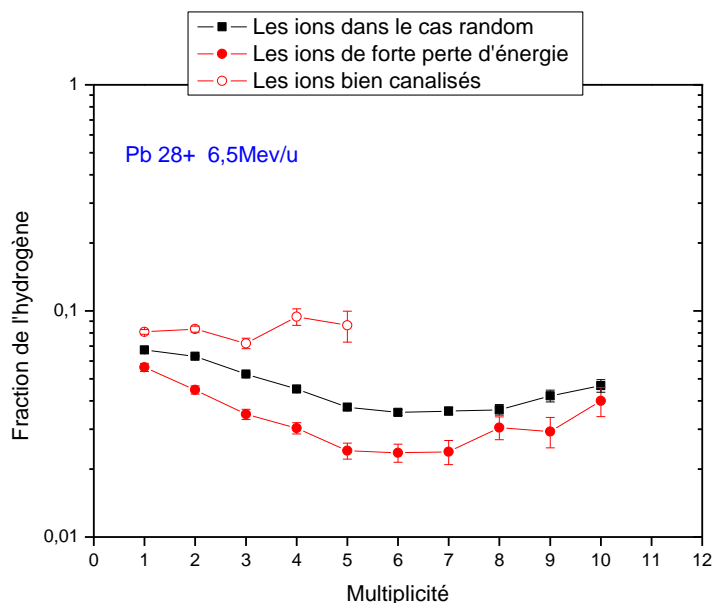


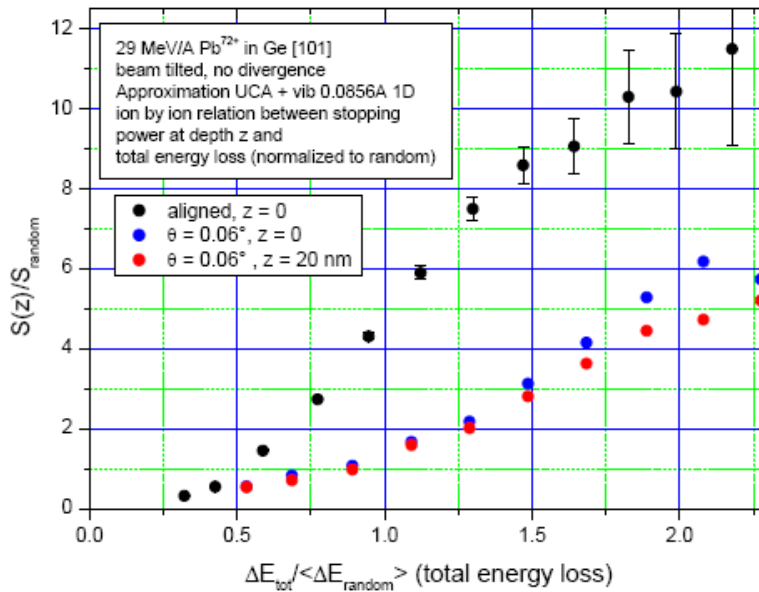
Figure 3-34: rendements des ions hydrogène (par ion détecté) en fonction de la multiplicité ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).

### ***f. L'effet du faible désalignement du faisceau sur l'émission ionique à basse énergie***

Pendant un certain temps durant l'expérience, le faisceau d'ions  $\text{Pb}^{28+}$  à basse énergie a été désaligné avec la direction de l'axe  $\langle 110 \rangle$  d'un angle de  $0,06^\circ$ , qui représente 61% de l'angle critique (Chapitre 1 :C -I. ).

Tant que le désalignement est inférieur à l'angle critique, les ions incidents restent toujours canalisés. Par contre, les ions ne rentrent pas parallèlement aux rangés d'atomes, et la sélection des ions de fortes pertes d'énergie n'implique plus nécessairement la sélection des ions de très petits paramètres d'impact à l'entrée du cristal.

La Figure 3-35 montre la perte d'énergie des ions  $\text{Pb}^{72+}$  à 29 MeV/u à l'entrée du cristal pour une profondeur donnée ( $z$ ) en fonction de la perte d'énergie normalisée dans le cristal. Ces courbes de perte d'énergie ont été faites par Alain L'Hoir par des simulations de type de Monte Carlo en utilisant le programme CASP (Chapitre 1 :C -II. 2) pour le calcul du transfert d'énergie. Ces simulations prennent en compte les vibrations thermiques du réseau atomique. Elles sont faites pour un faisceau de divergence angulaire nulle.

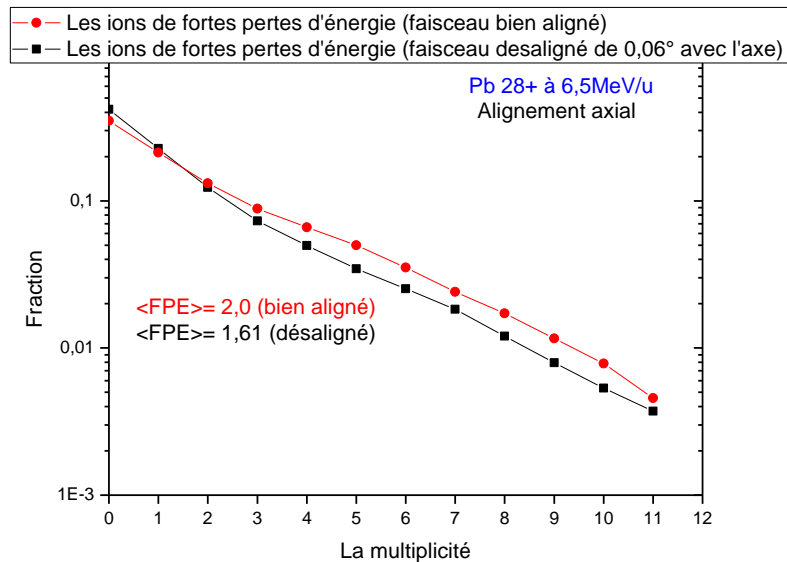


**Figure 3-35:** effet d'une assez faible inclinaison sur la relation  $S(z)$ ,  $z$  représentant la distance parcourue par les ions.

La courbe aux points noirs correspond au taux de perte d'énergie des ions à l'entrée du cristal ( $z=0$ ) dans le cas de l'alignement axial, c'est-à-dire lorsque l'angle  $\theta$  entre la direction du faisceau et la direction de l'axe  $\langle 110 \rangle$  du germanium est égale à 0. Les deux courbes aux points bleus et rouges correspondent respectivement au taux de perte d'énergie des ions à l'entrée du cristal ( $z=0$ ) et pour une profondeur de 20nm dans le cas d'un faible désalignement du faisceau ( $\theta = 0,06^\circ$ ).

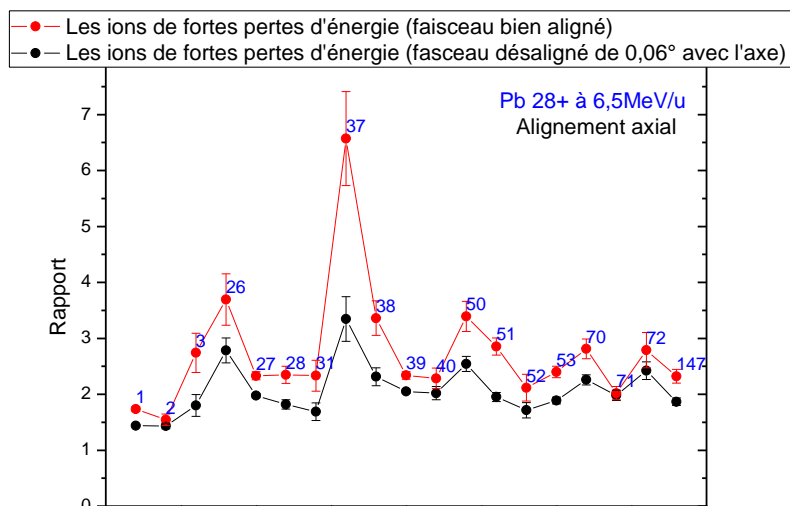
Comme on le voit, les ions de forte perte d'énergie, qui ont une perte d'énergie 2 fois la perte d'énergie random, ont un taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal qui est atténué d'un facteur  $\sim 2$  si le faisceau est désaligné de  $0,06^\circ$ .

Les deux Figure 3-36Figure 3-37 montrent respectivement, pour les ions de fortes pertes d'énergie, la distribution de multiplicité des ions secondaires et les rendements pour les différentes masses choisies (couleur rouge pour le faisceau bien aligné et couleur noire pour le faisceau désaligné).



**Figure 3-36:** distributions de la multiplicité des ions secondaires dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie: pour le faisceau bien aligné (points rouges), et pour le faisceau désaligné de  $0,06^\circ$  par rapport à l'axe (points noirs) ( $\text{Pb}^{28+}$  à  $6,5\text{MeV/u}$ ).

La multiplicité moyenne est plus grande pour le cas où le faisceau est bien aligné. Cela est dû au fait que le taux de perte d'énergie des ions à l'entrée du cristal est plus faible lorsque le faisceau est légèrement désaligné.



**Figure 3-37: rendements de différentes masses émises normalisés dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie : pour le faisceau bien aligné (points rouges), et pour le faisceau désaligné de  $0,06^\circ$  avec l'axe (points noirs) ( $Pb^{28+}$  à  $6,5 MeV/u$ ).**

Pour les rendements (Figure 3-37) comme la multiplicité, on a réduction dans le cas du faisceau désaligné et particulièrement pour les masses qui sont très sensibles au dépôt de l'énergie sous la couche amorphe (26, 37, 38, 50).

## **2) Etude de l'émission ionique en fonction de la perte d'énergie**

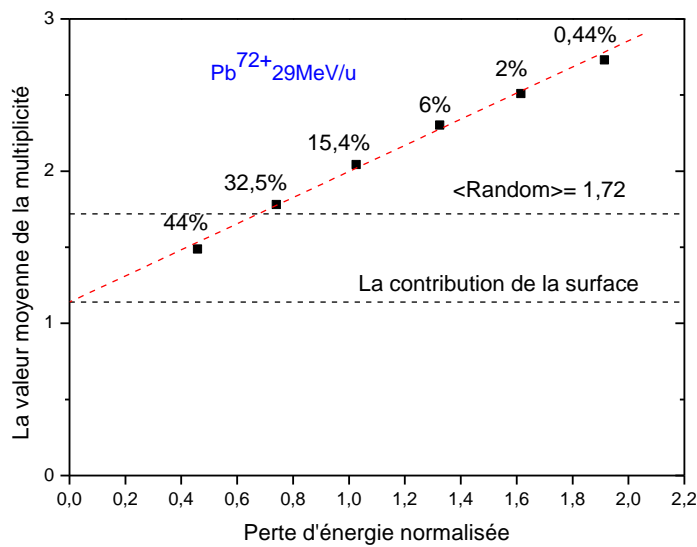
Dans cette partie, nous présentons, pour les trois systèmes, la variation de la valeur moyenne de la multiplicité, les rendements en fonction de la perte d'énergie des ions transmis dans le cas de l'alignement axial, normalisés par rapport à la perte d'énergie moyenne des ions transmis dans le cas d'une orientation quelconque (random). Nous avons sélectionné les ions transmis qui ont une perte d'énergie par tranches de 30% de la perte d'énergie moyenne dans le cas random. La largeur de l'intervalle est suffisante pour avoir de la statistique. Nous avons déterminé le centroïde de la distribution dans chaque intervalle, et nous avons regardé la variation des grandeurs citées plus haut en fonction du centroïde de chaque intervalle de perte d'énergie.

### ***a. Ions $Pb^{72+}$ incidents à $28,6 MeV/u$***

La perte d'énergie normalisée des ions transmis dans le cas d'alignement axial varie de 0,3 jusqu'à 2,5 fois la perte d'énergie moyenne dans le cas random (voir B-II-1)). Nous avons limité la perte d'énergie normalisée à la valeur 2,2 car nous avons des problèmes de soustraction du bruit de fond pour les ions détectés dans SPEG. Donc les intervalles commencent à la valeur 0,3 et se terminent à la valeur 2,2 avec une largeur pour chaque intervalle de 0,3, sauf pour le dernier intervalle qui commence à la valeur 1,8 et qui se termine à la valeur 2,2.

#### **(i) La valeur moyenne de la multiplicité**

La Figure 3-38 montre la variation de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie normalisée. On y voit une augmentation linéaire avec une pente de 0,85 ion par unité de perte d'énergie normalisée. Cette dernière valeur est à comparer avec celles des deux autres systèmes dans les sections suivantes. On a indiqué sur la figure la répartition (en pourcentages) des ions transmis dans chaque sélection par rapport au faisceau incident.



**Figure 3-38: Variation de la valeur moyenne de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie normalisée (Pb <sup>72+</sup> à 28,6MeV/u).**

Puisque la charge incidente ne varie pas (72+ est la charge à l'équilibre), les ions dont la perte d'énergie se trouve dans le premier intervalle (respectivement le dernier intervalle) sont les ions bien canalisés qui sont rentrés vers le centre du canal <110> (respectivement des ions de fortes pertes d'énergie qui sont rentrés à coté des rangées d'atomes). En passant des ions bien canalisés jusqu'aux ions de fortes pertes d'énergie, on peut balayer l'ensemble des paramètres d'impacts à l'entrée du cristal par rapport aux rangées d'atomes, et la valeur moyenne de la multiplicité augmente de 1,49 à 2,73.

On peut trouver surprenant que la multiplicité moyenne soit une fonction linéaire de la perte d'énergie intégrée sur l'ensemble de la cible. Certes, pour les ions bien canalisés et les ions random le taux de ralentissement est le même à la surface et dans l'épaisseur du cristal puisque la densité électronique rencontrée moyenne ne varie pas à l'intérieur du cristal. Par contre pour les ions de fortes pertes d'énergie par exemple, leur trajectoire oscille, et donc leur taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal est plus grand que le taux moyen à l'intérieur du cristal. On peut constater également que les ions qui ont une perte d'énergie normalisée de 0,7 ont la même multiplicité moyenne que les ions qui rentrent dans une direction quelconque (random) ; cela signifie que la densité électronique rencontrée à l'entrée du cristal est la même pour ces deux types de trajectoires incidentes.

En réalité, le taux de la perte d'énergie à l'entrée du cristal est le véritable paramètre significatif à utiliser pour faire des études quantitatives, d'où la nécessité de faire des simulations pour remonter à travers la charge et la perte d'énergie des ions transmis au taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal. Pour cela nous présenterons plus loin (d) les simulations pour étudier la multiplicité en fonction du taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal, effectués avec Alain L'Hoir qui est un membre éminent de notre collaboration.

Quoiqu'il en soit, l'allure de cette courbe nous suggère de l'extrapoler linéairement vers la perte d'énergie nulle. Cette extrapolation linéaire aurait pu être faite à partir des seuls

points correspondant aux ions les mieux canalisés et à la valeur random, mais cela ne changerait pas notablement les conclusions décrites ci-dessous.

Cette extrapolation nous permet d'estimer la contribution du dépôt de l'énergie dans la couche amorphe pour l'émission ionique, pour un dépôt d'énergie nul dans le cristal (la perte d'énergie dans la couche amorphe est négligeable devant celle de l'ensemble du cristal). On trouve la valeur 1,14. D'une part ceci montre que la couche amorphe contribue pour les deux tiers environ de la multiplicité totale en orientation quelconque. D'autre part, la variation mesurée de la multiplicité entre les ions les mieux canalisés et ceux de plus forte perte est supérieure à cette valeur fixe pour tous les ions incidents.

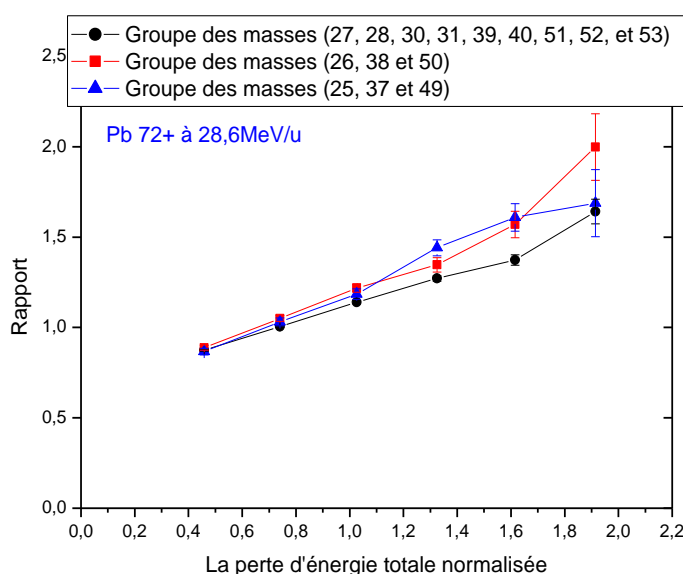
A partir de cette valeur on peut estimer l'effet du transfert d'énergie aux électrons à l'intérieur du cristal en enlevant la contribution de la surface.

Pour les ions bien canalisés dans le cas de Pb à haute énergie, le transfert d'énergie ne s'effectue pas seulement aux électrons de valence. En effet, les atomes de l'axe  $\langle 110 \rangle$  se situent à une distance du centre de l'axe de 2,12 Å. Donc, d'après la coupure adiabatique (Chapitre 1 :A -II. 1)a(i)) les électrons de cœur de la couche M pour les orbitales 3p et 3d peuvent recevoir un transfert d'énergie, c'est-à-dire être ionisés, pour une distance plus grande que 2,12Å.

Si on enlève la contribution de la surface, on trouve la valeur de multiplicité moyenne 0.34. Cette valeur est faible puisque le transfert d'énergie aux électrons est faible ; en effet, le transfert d'énergie se fait essentiellement par des collisions lointaines.

## (ii) Rendements

Nous allons étudier maintenant les rendements des différentes masses émises. Pour avoir une statistique suffisante, nous avons sommé les rendements des masses qui ont le même comportement dans le cas de Pb<sup>28+</sup> à 6,5MeV/u (Figure 3-31) pour les ions de forte perte d'énergie par rapport à celles correspondantes dans le cas random, et le même comportement vis-à-vis de la variation avec la charge incidente dans le cas random à haute énergie pour les deux cas Pb<sup>72+</sup> et Pb<sup>56+</sup> (Figure 3-16).



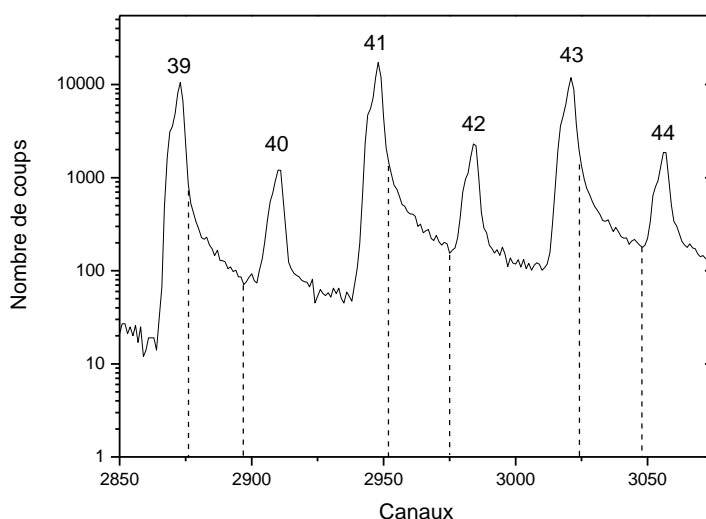


**Figure 3-39: rendements des groupes de masses normalisés par rapport aux rendements correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie normalisée ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u).**

La Figure 3-39 montre la variation des rendements de trois premiers groupes de masses en fonction du centre de la distribution dans chaque intervalle de perte d'énergie normalisée. Ces rendements sont normalisés aux rendements correspondant au cas random. Le groupe 1 (cercles noirs) correspond aux masses (en unité u.m.a.) 27, 28, 30, 31, 39, 40, 51, 52 et 53. Le groupe 2 (carrés rouges) correspond aux masses 26, 38 et 50, et le groupe 3 (triangles bleus) correspond aux masses 25, 37, et 49. Les rendements décroissent fortement du groupe 1 au groupe 3.

L'augmentation des rendements en fonction de la perte d'énergie est significativement plus faible pour les espèces appartenant au groupe 1 ; la différence entre les groupes 2 et 3 n'est pas évidente.

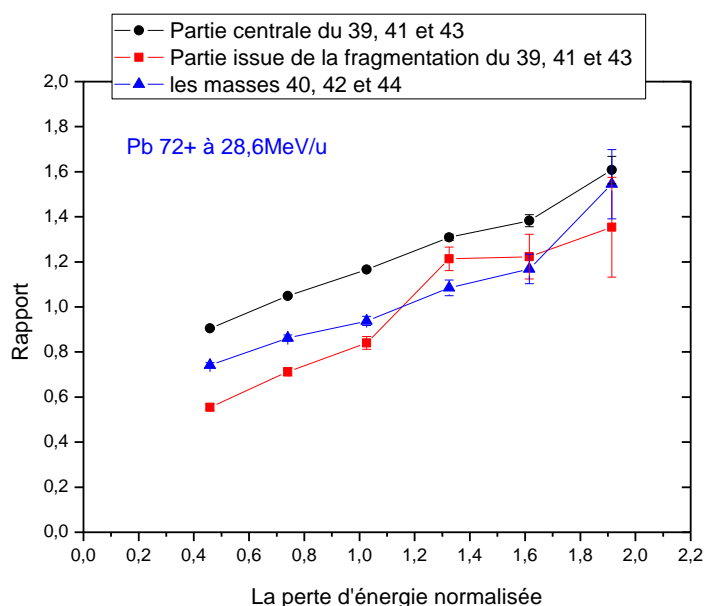
Donc, dans ce cas des ions  $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u, il n'y a pas une grande différence entre le comportement des trois groupes. Les rendements de ces trois groupes augmentent linéairement avec la perte d'énergie (comme pour la valeur moyenne de la multiplicité).



**Figure 3-40: spectre de temps de vol, de la masse 39 à la masse 44, pour une orientation quelconque ( $\text{Pb}^{72+}$  à 28,6 MeV/u).**

La Figure 3-40 montre un spectre du temps de vol de la masse 39 à la masse 44 dans le cas d'une orientation quelconque. Les pics correspondant aux ions secondaires de masses 39, 41 et 43 ne sont pas symétriques, ils ont une traîne du côté des masses élevées qui provient de la fragmentation de grandes molécules. Pour les masses paires, il y a certainement aussi une composante de fragmentation, mais, compte-tenu du rapport pic sur fond clairement observable avec cette échelle logarithmique, cette composante de fragmentation ne ressort pas facilement du bruit de fond. Pour les masses impaires, nous avons sommé les rendements de la partie centrale et ceux de la partie droite de chaque pic (la partie qui est issue de la fragmentation, délimitée par les lignes en pointillés sur la figure), et nous avons regardé leur variation avec le dépôt d'énergie sous la couche amorphe. Nous avons aussi regardé la

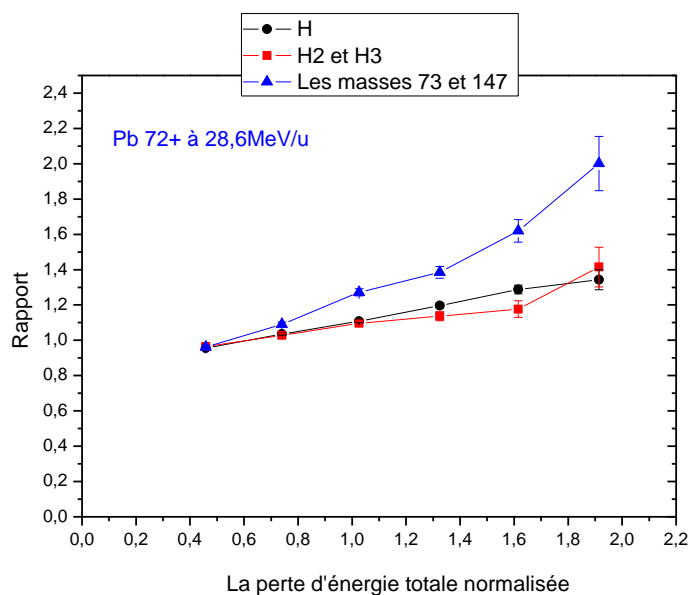
variation de la somme des rendements des pics intermédiaires des masses 40, 42 et 44, qui sont à peu près symétriques, pour avoir une référence dans cette région de masse.



**Figure 3-41: rendements normalisés par rapport aux rendements correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie normalisée : la courbe noire correspond à la partie centrale des pics de masses 39, 41 et 43, la courbe rouge correspond à la partie issue de la fragmentation pour les mêmes pics de masses, la courbe bleue correspond aux pics des masses 40, 42 et 44 (Pb<sup>72+</sup> à 28,6MeV/u).**

La Figure 3-41 montre la variation des rendements normalisés aux rendements obtenus dans le cas random en fonction de la perte d'énergie normalisée. La courbe avec les cercles noirs correspond à la somme de chaque partie centrale des pics de masses 39, 41 et 43, elle a un comportement linéaire. La courbe avec les carrés rouges correspond à la somme de chaque partie issue de la fragmentation pour les mêmes pics de masses, elle augmente brutalement pour les ions qui ont une perte d'énergie plus grande que la perte d'énergie moyenne d'ions transmis dans le cas random. La courbe avec les triangles bleus correspond à la somme des rendements normalisés des pics de masses 40, 42 et 44, elle augmente aussi linéairement.

On peut cependant s'étonner du fait que le rapport des rendements des masses paires et impaires soient différents (entre 15 et 20% plus élevé dans le cas des masses impaires) et ceci indépendamment de la perte d'énergie. Nous n'avons pas d'explication à cet effet, peut-être s'agit-il du fait que le rapport signal/bruit n'est pas le même. La partie qui vient de la fragmentation augmente avec le dépôt d'énergie sous la couche amorphe ; cependant la partie centrale (qui est probablement moins liée à la fragmentation), ainsi que les masses 40, 42 et 44, se comportent de la même façon, ce qui implique que la fragmentation n'est pas l'unique responsable de l'augmentation du rendement de ces masses. Dans ce cas là, la fragmentation n'est pas dominante.



**Figure 3-42: rendements normalisés par rapport aux rendements correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie totale normalisée : les cercles noirs correspondent aux rendements de  $H^+$ , les carrés rouges correspondent à la somme des rendements de  $H_2^+$  et de  $H_3^+$ , les triangles bleus correspondent à la somme des rendements des masses 73 et 147 ( $Pb^{72+}$  à 28,6MeV/u).**

Nous avons aussi étudié l'émission de l'hydrogène en fonction du dépôt de l'énergie sous la couche amorphe. Nous n'avons pas fait l'étude séparément pour les ions  $H_2^+$  et  $H_3^+$  à cause du manque de statistique. Ces deux espèces ont donc été regroupées.

La Figure 3-42 montre la variation des rendements normalisés par rapport à ceux qui correspondent au cas random en fonction de la perte d'énergie.

La courbe avec les cercles noirs correspond aux rendements d'ions  $H^+$ , son augmentation est linéaire et lente. La courbe avec les carrés rouges correspond à la somme des rendements des ions moléculaires  $H_2^+$  et  $H_3^+$ ; là aussi l'augmentation est linéaire et lente. Cela montre, comme on l'a déjà vu dans le cas d'ions de fortes pertes d'énergie pour les trois systèmes, que l'émission de l'hydrogène dépend faiblement du dépôt d'énergie sous la couche amorphe. Le fait que nous observions toutefois une faible dépendance avec la perte d'énergie montre que la profondeur associée au dépôt d'énergie conduisant à l'émission de l'hydrogène est légèrement supérieure à l'épaisseur de couche amorphe de notre cristal.

La courbe avec les triangles bleus correspond à la somme des rendements des ions de masses 73 et 147 caractéristiques des graisses siliconées présentes dans la chambre à vide. Son augmentation est presque linéaire et est très proche des autres rendements que nous avons décrits auparavant.

En conclusion sur cette partie, les différents rendements présentés ci-dessus augmentent linéairement avec la perte d'énergie. A part les rendements des ions hydrogène qui n'augmentent que de 40% entre les ions les mieux et les moins bien canalisés, ils ont tous pratiquement la même dépendance (augmentation d'un facteur proche de 2). L'augmentation de ces différents rendements avec la perte d'énergie, comme on a déjà dit pour la valeur moyenne de la multiplicité, montre l'effet du dépôt de l'énergie sous la couche amorphe ou

l'effet de la densité électronique rencontrée à l'entrée du cristal (sauf pour la famille de l'hydrogène qui a une variation lente).

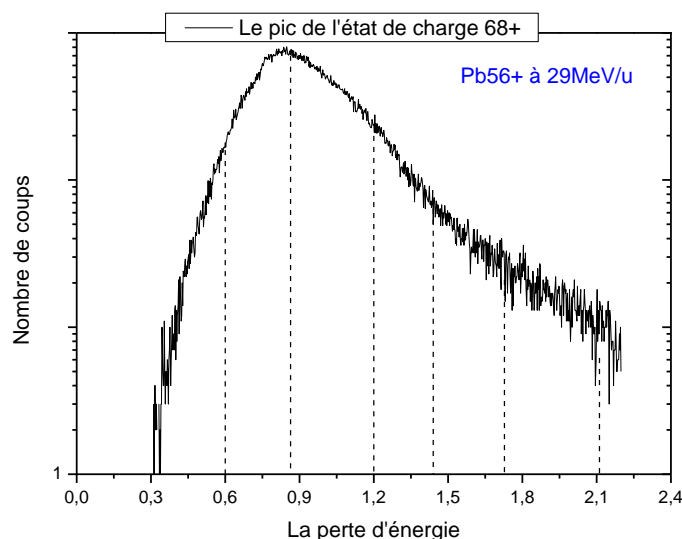
Par contre, la pente de cette variation linéaire est plus faible dans le cas des rendements que dans le cas de la valeur moyenne de la multiplicité, puisque dans ce dernier cas on prend en compte les ions du bruit de fond qui viennent de la fragmentation et comme on a déjà vu dans Figure 3-41, la fragmentation augmente avec le taux de dépôt d'énergie sous la couche amorphe.

### ***b. Ions Pb56+ incidents à 29MeV/u***

Dans le cas des ions incidents Pb<sup>56+</sup>, nous avons regardé les mêmes grandeurs (multiplicité, rendements) que nous avons présentées auparavant, par tranche de perte d'énergie normalisée de 0,3 jusqu'à 2,2.

#### **(i) Les centroïdes des sélections en perte d'énergie**

Les pics d'états de charge ont une largeur due à la dispersion en perte d'énergie des ions transmis comme nous avons déjà vu dans le Chapitre 2 :B -III. 4). Pour Pb<sup>56+</sup>, la largeur de chaque pic dépend de l'état de charge ; plus l'état de charge est élevé, plus large est le pic. La Figure 3-43 présente le pic d'état de charge 68+ avec les différentes sélections en perte d'énergie. La largeur de chaque sélection, comme nous avons déjà dit, fait 30% de la perte d'énergie moyenne dans le cas random sauf la dernière sélection qui fait 40% (pour avoir assez de statistique). Pour chaque sélection, nous avons calculé le centre de gravité en perte d'énergie qu'on appellera le centroïde de la perte d'énergie affecté à chaque sélection. Nous avons fait la même chose pour l'ensemble des états de charge.



**Figure 3-43: Distribution en perte d'énergie des ions émergeant dans le pic d'état de charge 68+ avec les différentes sélections**

La Figure 3-44 montre les centroïdes des pertes d'énergie des différentes sélections pour l'ensemble des états de charge.

Pour la première sélection en perte d'énergie (0,3-0,6), la valeur augmente légèrement avec l'état de charge puisqu'on passe des ions très bien canalisés aux ions bien canalisés qui ont rencontré une densité électronique moyenne plus grande, donc ils ont fait plus d'échanges de charges et ils ont une perte d'énergie plus grande. Pour les états de charges entre 64+ et 67+ et pour l'état de charge 73+, nous n'avons pas mis les centres pour cette sélection à cause du manque de statistique. Il faut noter que la fraction des ions bien canalisés diminue lorsque l'état de charge augmente.

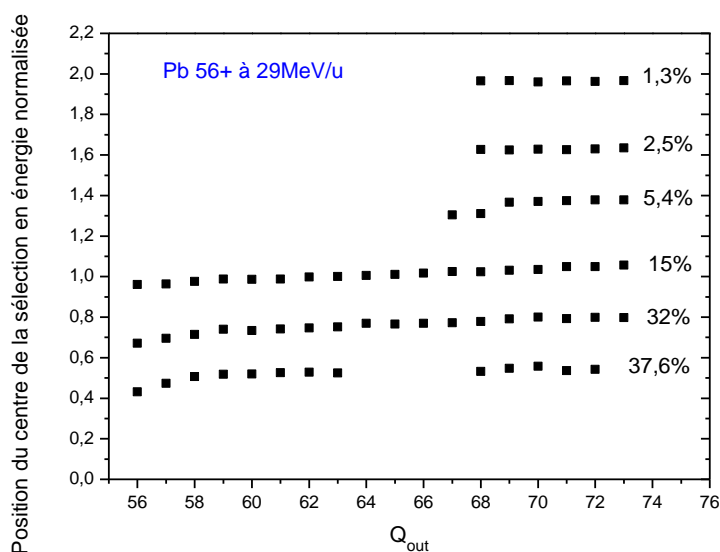
Pour les sélections en perte d'énergie comprise entre 0,6 et 1,2, tous les états de charge sont représentés. On constate que là aussi, les centroïdes augmentent avec l'état de charge car plus la densité électronique moyenne rencontrée augmente plus l'état de charge augmente et plus la perte d'énergie augmente.

Une autre explication partielle de cette augmentation provient de notre définition de la perte d'énergie normalisée, qui est corrigée de la charge quadratique moyenne dans la cible : cette correction suppose une évolution linéaire de la charge des ions entre l'état de charge initial et final, ce qui n'est pas rigoureusement exact. En effet, l'épluchage des électrons est certainement plus rapide au début qu'à la fin du parcours, les électrons internes étant plus difficile à perdre.

Pour les sélections en perte d'énergie entre 1,2 et 2,2 qui correspondent aux ions de fortes pertes d'énergie, seuls les grands états de charges entre 68 et 73 sont représentés puisque ce sont les ions mal canalisés.

Sur la même figure, nous avons aussi représenté les pourcentages des ions dans une sélection donnée par rapport au faisceau incident.

Avec la perte d'énergie et l'état de charge des ions transmis on peut identifier leur énergie transverse à l'intérieur du cristal, qui est liée au paramètre d'impact à l'entrée du cristal.



**Figure 3-44 : Centroïdes des différentes sélections en perte d'énergie normalisée pour chaque pic d'état de charge à la sortie du cristal (Pb<sup>56+</sup> à 29MeV/u).**

## (ii) La valeur moyenne de la multiplicité

La Figure 3-45 présente la valeur moyenne de la multiplicité en fonction des centroïdes des différentes sélections en perte d'énergie. On a six groupes qui correspondent chacun aux centroïdes pour une sélection donnée pour l'ensemble des états de charge.

Pour une sélection donnée et en fonction de l'état de charge, on voit bien que l'augmentation en perte d'énergie est plus faible que l'augmentation de la multiplicité. Pour comprendre ce qui se passe, on doit prendre en compte que l'échange de charge n'est pas instantané et que le taux de ralentissement n'est pas le même à la surface et dans l'épaisseur du cristal. Donc on peut supposer en première approximation que l'échange de charge à l'entrée du cristal est négligeable, surtout pour les ions bien canalisés qui se trouvent dans la première sélection en perte d'énergie. Alors l'augmentation de la multiplicité vient de l'effet du dépôt d'énergie à l'entrée du cristal qui est liée à la densité électronique rencontrée.

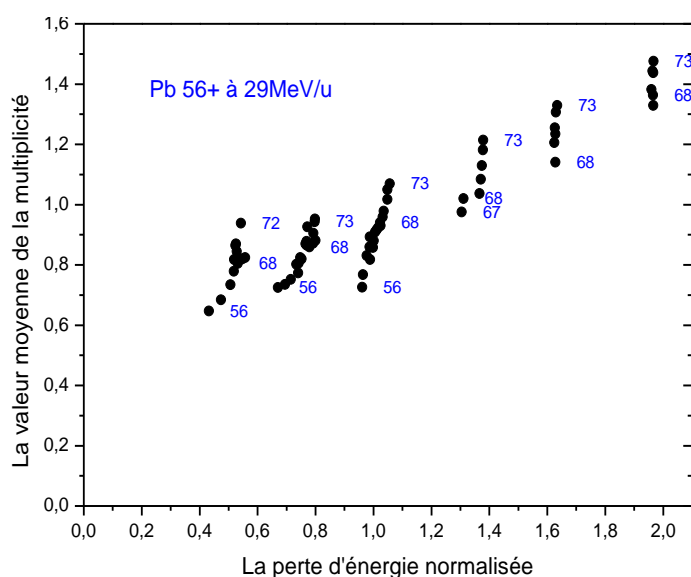
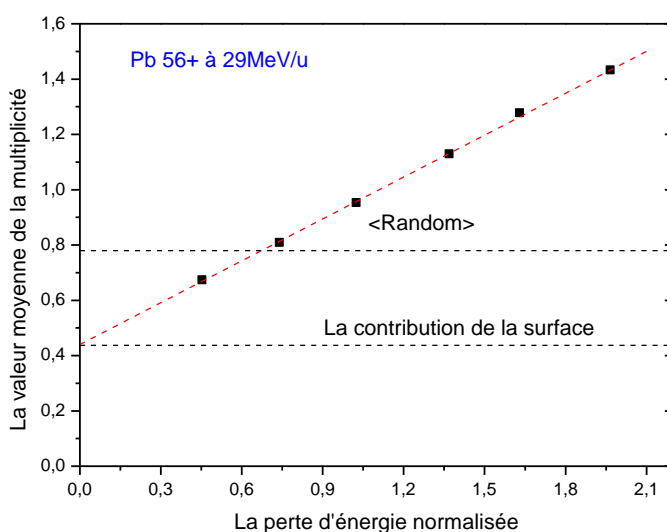


Figure 3-45: la multiplicité en fonction du centroïde de chaque sélection en perte d'énergie normalisée pour chaque état de charge à la sortie du cristal ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29 MeV/u).



**Figure 3-46: la variation de la valeur moyenne de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie normalisée ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).**

La Figure 3-46 montre la valeur moyenne de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie. Nous avons obtenu cette courbe en prenant la moyenne de la multiplicité et la moyenne pondérée des centroïdes des sélections pour chaque groupe dans la Figure 3-45. La multiplicité augmente linéairement avec une pente de 0,51 de la valeur 0,67 pour les ions bien canalisés jusqu'à la valeur 1,43 pour les ions de fortes pertes d'énergie. L'extrapolation linéaire de cette droite vers la perte d'énergie nulle nous permet d'estimer, comme nous avons déjà fait dans le cas du  $\text{Pb}^{72+}$ , la contribution du dépôt de l'énergie dans la couche amorphe pour l'émission ionique. On trouve la valeur 0,44. À partir de cette valeur on peut estimer l'effet du transfert d'énergie faible aux électrons du cristal (dans le cas des ions bien canalisés) et on trouve la valeur 0,23.

Le Tableau 3-7 résume les différentes grandeurs extraites pour la multiplicité dans les deux cas  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$ .

	Pente	Couche amorphe
$\text{Pb}^{72+}$	0,85	1,14
$\text{Pb}^{56+}$	0,51	0,44
$n(Q^n)$	2	3,8

**Tableau 3-7 : comparaison entre  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$**

Lorsque nous avons calculé la perte d'énergie normalisée des ions transmis, nous avons fait la correction de la charge quadratique moyenne dans la cible. Cette correction est une approximation qui marche bien dans le cas du  $\text{Pb}^{56+}$  car l'échange de charge n'est pas rapide. Donc en faisant les mêmes sélections en perte d'énergie pour les ions transmis dans les deux cas de  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$  à haute énergie, on sélectionne les mêmes paramètres d'impact à l'entrée du cristal. Alors l'étude de l'émission ionique en fonction du taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal revient à l'étude en fonction du carré des charges incidentes. Si on compare la pente de la multiplicité, on trouve une dépendance avec la charge au carré. Donc la dépendance de la contribution du dépôt d'énergie sous la couche amorphe sur l'émission ionique avec la charge est en  $Q^2$ . Cela montre que la contribution du volume sous la couche amorphe sur l'émission ionique ne dépend que de la perte d'énergie puisqu'elle varie en  $Q^2$ .

Pour la contribution du dépôt d'énergie direct dans la couche amorphe à l'émission ionique, on trouve une dépendance avec la charge à la puissance 3,8. On a une dépendance très forte avec la charge c'est-à-dire que l'émission ionique de la couche amorphe est très sensible au dépôt de l'énergie en surface. Cette forte dépendance de la couche amorphe avec la charge incidente ne vient pas seulement de la fragmentation des ions émis puisque la probabilité de fragmentation des ions émis dans le cas des ions bien canalisés est presque la même dans les deux cas des ions  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$ .

### (iii) Rendements

Pour les différents rendements présentés ci-dessous, on a presque le même comportement que dans le cas du  $\text{Pb}^{72+}$ .

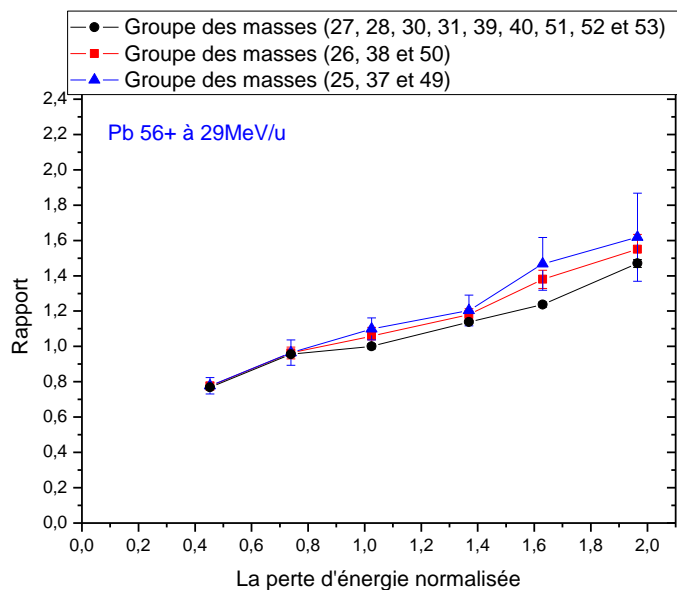


Figure 3-47: rendements des groupes de masses normalisés par rapport aux rendements correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie normalisée ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).

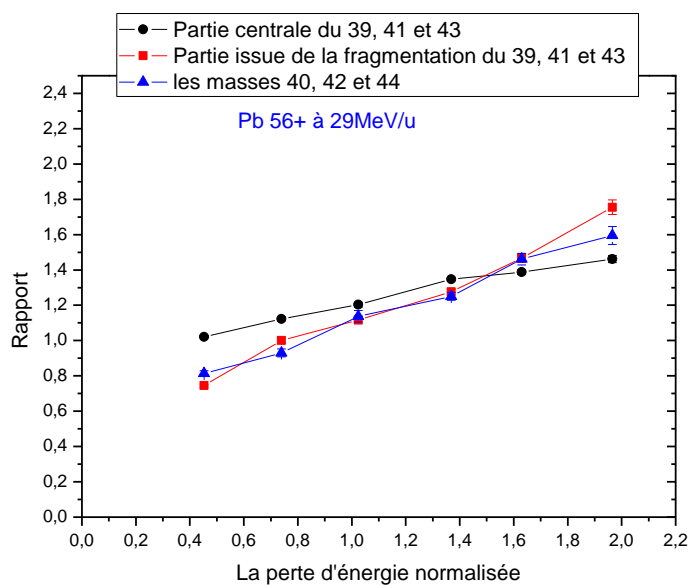
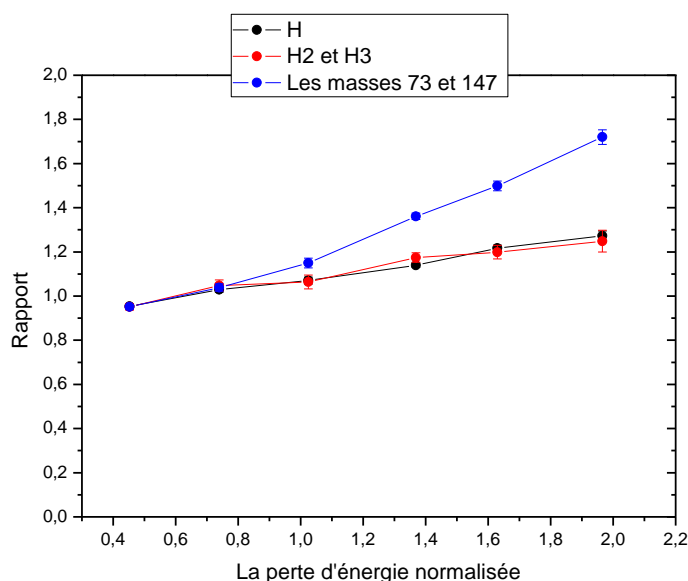


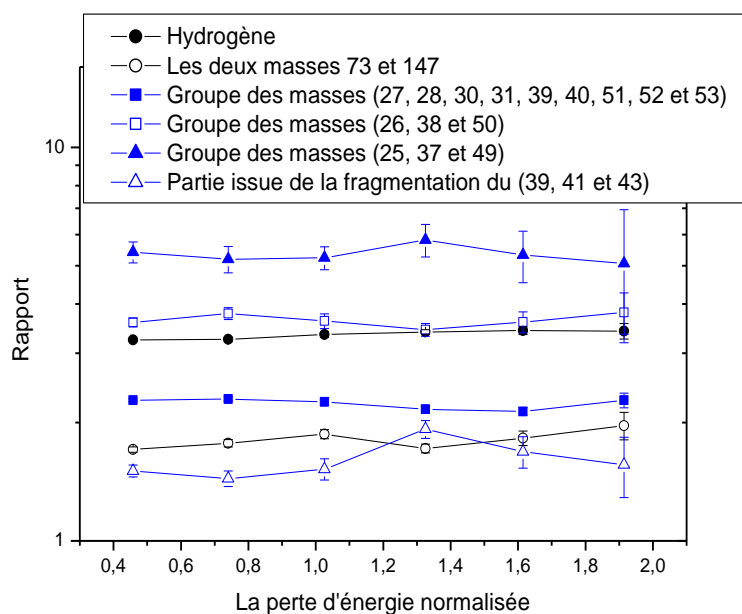
Figure 3-48: rendements normalisés par rapport aux rendements correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie normalisée : la courbe noire correspond à la partie centrale des pics de masses 39, 41 et 43, la courbe rouge correspond à la partie issue de la fragmentation pour les mêmes pics de masses, la courbe bleue correspond aux pics des masses 40, 42 et 44 ( $\text{Pb}^{56+}$  à 29MeV/u).





**Figure 3-49: rendements normalisés par rapport aux rendements correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie totale normalisée : la courbe noire correspond au rendement des ions  $H^+$ , la courbe rouge correspond à la somme des rendements des ions  $H_2^+$  et  $H_3^+$ , la courbe bleue correspond à la somme des rendements des ions moléculaires de masses 73 et 147 ( $Pb^{56+}$  à 29MeV/u).**

Pour la plupart des espèces émises, nous retrouvons donc le comportement observé dans le cas précédent des ions  $Pb^{72+}$ , avec une extinction de la plupart des rendements de l'ordre de 20% pour les ions bien canalisés, et une augmentation de 20 à 60% suivant la plupart des espèces émises dans le cas des ions de fortes pertes d'énergie.



**Figure 3-50: rendements des différentes masses dans le cas de  $Pb^{72+}$  normalisés aux rendements des mêmes masses dans le cas de  $Pb^{56+}$ .**

La Figure 3-50 nous montre le rapport des rendements de différentes masses entre le cas de  $Pb^{72+}$  et le cas de  $Pb^{56+}$ . Pour toutes ces espèces, le rapport est resté presque constant en fonction de la perte d'énergie. Par contre, la dépendance avec la charge varie selon l'espèce émise. On a une dépendance forte pour les masses 25, 37 et 49, et une dépendance faible pour les masses 73 et 147 et pour les ions secondaires issus de la fragmentation (39, 41 et 43). Le Tableau 3-8 donne les différentes valeurs de la dépendance en charge selon la masse émise.

	27,28,30, 31,39,40,51,52,53	26, 38, 50	25, 37, 49	Ions issues de la frag. (39,41,43)	H+	73 et 147
$n(Q^n)$	$3,2 \pm 0,2$	$5,1 \pm 0,2$	$6,7 \pm 0,3$	$1,7 \pm 0,3$	$4,7 \pm 0,1$	$2,1 \pm 0,3$

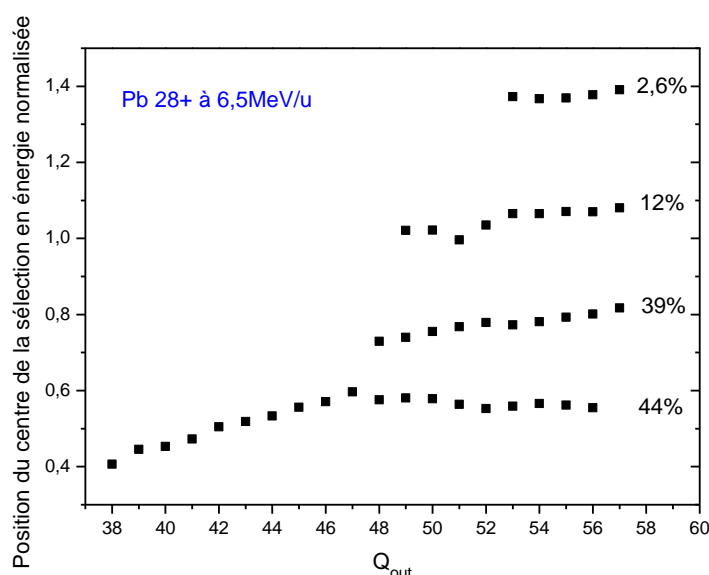
**Tableau 3-8 : la dépendance avec la charge incidente pour les différentes masses émises**

Si on compare la Figure 3-50 avec la Figure 3-16 qui correspond au rapport des rendements des différentes masses pour les ions  $Pb^{72+}$  et  $Pb^{56+}$  incidents en orientation quelconque, on trouve les mêmes rapports. Donc, la dépendance en charge est la même pour les ions bien canalisés, de forte perte d'énergie et random. Cela montre que l'émission ionique de ces espèces vient de l'effet du dépôt de l'énergie sous la couche amorphe pour une profondeur inférieure à la distance moyenne ( $d_{moy}$ ) pour que la charge augmente dans le cas des ions 56+ incidents.

### ***c. Ions $Pb^{28+}$ incidents à 6,5MeV/u***

Dans le cas des ions incidents  $Pb^{28+}$  à basse énergie, nous avons regardé les mêmes grandeurs (multiplicité, rendements), par tranche de perte d'énergie normalisée de 0,35 jusqu'à 1,65. À basse énergie, la perte d'énergie d'ions de fortes pertes d'énergie ne peut pas aller au-delà de 1,65 fois la perte d'énergie random (voir Chapitre 3 :D -II. 2)).

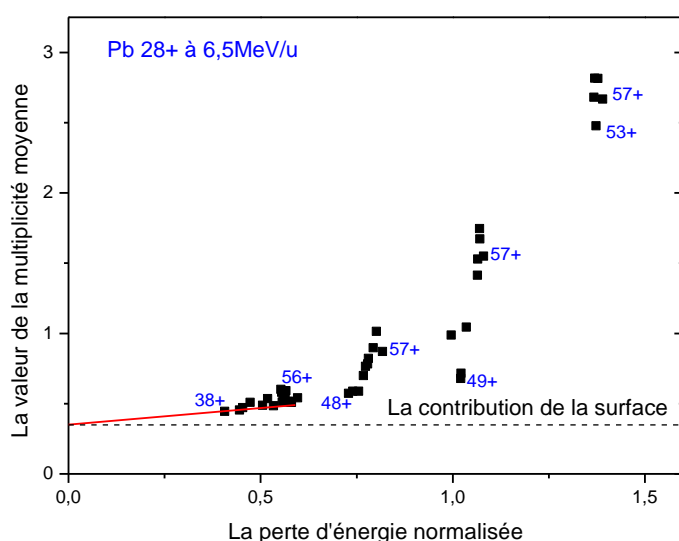
#### **(i) Les centroïdes des sélections en perte d'énergie**



**Figure 3-51: Centroïdes des différentes sélections en perte d'énergie normalisée pour chaque pic d'état de charge à la sortie du cristal ( $Pb^{28+}$  à 6,5MeV/u).**

La Figure 3-51 montre les centroïdes des pertes d'énergie des différentes sélections pour l'ensemble des états de charge (comme la Figure 3-44 dans le cas des ions  $\text{Pb}^{56+}$ ). Pour les états de charge plus petits que 48, la distribution en énergie est étroite (ce sont les ions bien canalisés), donc on a une seule sélection en perte d'énergie qui est la première sélection (0,35-0,65) c'est-à-dire que cette sélection renferme le pic d'état de charge entier, et le centroïde de la sélection correspond au centre du pic.

Pour les états de charge supérieurs à 48, on a des ions de plus en plus mal canalisés qui ont des distributions larges en perte d'énergie, donc on a un plus grand nombre de sélections par état de charge.



**Figure 3-52:** la valeur moyenne de la multiplicité en fonction du centre de chaque sélection en perte d'énergie normalisée pour chaque état de charge à la sortie du cristal ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5 MeV/u).

La Figure 3-52 présente la valeur moyenne de la multiplicité en fonction des centroïdes des différentes sélections en perte d'énergie (comme la Figure 3-45 dans le cas de  $\text{Pb}^{56+}$ ). Cette fois, on a quatre groupes qui correspondent chacun aux centroïdes pour une sélection donnée pour l'ensemble des états de charge.

Pour les centroïdes vers les faibles pertes d'énergie, la variation de la multiplicité est linéaire. Donc l'extrapolation linéaire de ces points vers la perte d'énergie nulle nous permet d'estimer, comme nous l'avons déjà fait pour les deux cas à haute énergie, que la contribution du dépôt d'énergie dans la couche amorphe pour l'émission ionique est, en moyenne, de 0,35 ion secondaire émis par ion incident.

Pour les ions bien canalisés à basse énergie, le transfert d'énergie s'effectue aussi aux électrons de cœur, comme à haute énergie, mais seulement pour les électrons 3d de la couche M. Lorsqu'on enlève la contribution sur l'émission ionique du dépôt d'énergie en surface, on trouve la valeur 0,09. Cette valeur est très faible puisque le nombre d'électrons, sur lesquels s'effectuent les transferts d'énergie primaires, est réduit.

Pour un groupe donné, c'est-à-dire pour une même sélection en perte d'énergie, on voit que la valeur moyenne de la multiplicité varie avec l'état de charge à la sortie du cristal.

Pour une même sélection en perte d'énergie, on n'a pas la même sélection en paramètre d'impact à l'entrée du cristal pour les deux ions incidents  $Pb^{28+}$  et  $Pb^{56+}$  ; donc pour comparer ces différentes valeurs moyennes de la multiplicité avec celles dans le cas des ions  $Pb^{56+}$ , nous allons utiliser les pourcentages des ions dans une sélection donnée par rapport au faisceau incident (faute de mieux on suppose que le faisceau a la même distribution en énergie transverse, ce qui est discutable). Les ions des deux premières sélections à basse énergie, qui représentent 83% du faisceau incident, ont presque le même ensemble de paramètre d'impact à l'entrée du cristal que les ions des trois premières sélections dans le cas des ions  $Pb^{56+}$  à haute énergie, qui représentent 85% du faisceau incident (Figure 3-45). Pour cette sélection des ions incidents, la multiplicité a varié de 0,44 jusqu'à 1,0 à basse énergie, et de 0,64 jusqu'à 1,1 à haute énergie.

Le taux de perte d'énergie moyenne dans la couche amorphe à basse énergie pour les ions  $Pb^{28+}$  est inférieur à celui qui est obtenu à haute énergie pour les ions  $Pb^{56+}$  (facteur 1/2). Par contre, la contribution de la couche amorphe à l'émission ionique, obtenue par extrapolation à l'origine de la perte d'énergie normalisée, est légèrement supérieure à haute énergie (0,44) qu'à basse énergie (0,35).

A l'entrée du cristal, le taux de perte d'énergie à basse énergie a augmenté puisque l'état de charge des ions est passé de  $28+$  à  $33+$ . Mais le taux de perte d'énergie pour les ions  $Pb^{56+}$  est toujours plus grand (facteur 1,7). Lorsqu'on a enlevé la contribution de la couche amorphe sur la multiplicité pour les ions très bien canalisés dans les deux cas,  $Pb^{28+}$  et  $Pb^{56+}$ , on a trouvé respectivement pour la multiplicité les valeurs 0,09 et 0,23 c'est-à-dire qu'il y a plus qu'un facteur 2 en faveur de la multiplicité associée aux ions  $Pb^{56+}$ . Cette réduction de la multiplicité à basse énergie est plus forte que celle de la contribution de la couche amorphe. En effet, dans la couche amorphe, les ions incidents peuvent transférer de l'énergie aux électrons de cœur et aux électrons de valence ; par contre, dans le cristal, le nombre d'électrons sur lesquels s'effectuent les transferts d'énergie primaires se réduit pour les ions bien canalisés. Cette réduction est plus forte à basse énergie.

Après, lorsqu'on passe des ions très bien canalisés aux ions bien canalisés, la charge des ions à l'entrée du cristal évolue plus rapidement (l'échange de charge dépend de la densité électronique rencontrée). Donc le taux de perte d'énergie augmente et c'est pourquoi l'écart entre les valeurs de la multiplicité augmente pour les deux cas  $Pb^{28+}$  et  $Pb^{56+}$ .

Maintenant, nous allons comparer les ions des deux dernières sélections en perte d'énergie dans le cas de  $Pb^{28+}$  (0,95-1,25 et 1,25-1,65) avec les ions des trois dernières sélections en perte d'énergie dans le cas de  $Pb^{56+}$  (1,2-1,5, 1,5-1,8 et 1,8-2,2). Ces deux ensembles d'ions ont les mêmes paramètres d'impact à l'entrée du cristal. La multiplicité a varié de 0,68 jusqu'à 2,8 à basse énergie, et de 0,97 jusqu'à 1,47 à haute énergie. On a une réduction de la multiplicité à basse énergie par rapport à la haute énergie ( $Pb^{56+}$ ) pour les ions qui ont presque la même perte d'énergie hors canalisation et avec un faible état de charge ( $49+$ ). Cette réduction est due aussi à l'effet de la vitesse qui n'est pas compensé par l'état de charge de ces ions qui est faible à l'entrée du cristal. Par contre pour les ions de forte perte d'énergie à basse énergie, qui sont dans la dernière sélection, la multiplicité a augmenté presque d'un facteur 2 par rapport aux ions de forte perte d'énergie dans le cas de  $Pb^{56+}$ . La question qui se pose est la suivante : est ce que cette forte augmentation est due seulement à l'augmentation de la charge de ces ions, qui entraîne une augmentation du dépôt d'énergie à

l'entrée du cristal ? Pour répondre à cette question et pour savoir s'il y a un autre effet, nous avons fait la comparaison suivante.

Le Tableau 3-9 montre la sélection en perte d'énergie des ions transmis avec leur état de charge à la sortie du cristal, et avec leur état de charge quadratique moyen dans le cristal (calculé par la racine carré de la moyenne des carrés de la charge à l'entrée du cristal et à la sortie du cristal, en supposant donc en grossière approximation que la charge évolue linéairement entre l'entrée et la sortie). Aussi, il y a la multiplicité correspondante sans la contribution de la couche amorphe (SCCA). Nous avons supposé que la charge moyenne des ions incidents  $Pb^{28+}$  dans la zone qui contribue à l'émission ionique est égale, comme limite supérieure, à la charge moyenne dans le cristal.

$Pb^{28+}$	Sélection en Perte d'énergie	$Q_{out}$	$Q_{moy}$	Multiplicité (SCCA)
	0,95-1 ,25	49	42	0,33
	1,25-1,65	56	46	2,47

**Tableau 3-9 : la sélection en perte d'énergie des ions transmis avec leur état de charge à la sortie du cristal, leur état de charge moyen à l'intérieur du cristal, et la multiplicité correspondante sans la contribution de la couche amorphe (SCCA) ( $Pb^{28+}$  à 6,5MeV/u).**

Le Tableau 3-10 est, pour le cas du  $Pb^{56+}$ , le même que le Tableau 3-9 sauf que nous n'avons pas mis la charge moyenne puisque nous avons supposé que la charge incidente dans le cas de  $Pb^{56+}$  reste constante dans la zone qui contribue à l'émission ionique pour la majorité des espèces émises.

$Pb^{56+}$	Sélection en Perte d'énergie	$Q_{out}$	$Q_{in}$	Multiplicité (SCCA)
	1 ,2-1,5	67	56	0,23
	1,8-2 ,2	73	56	1,03

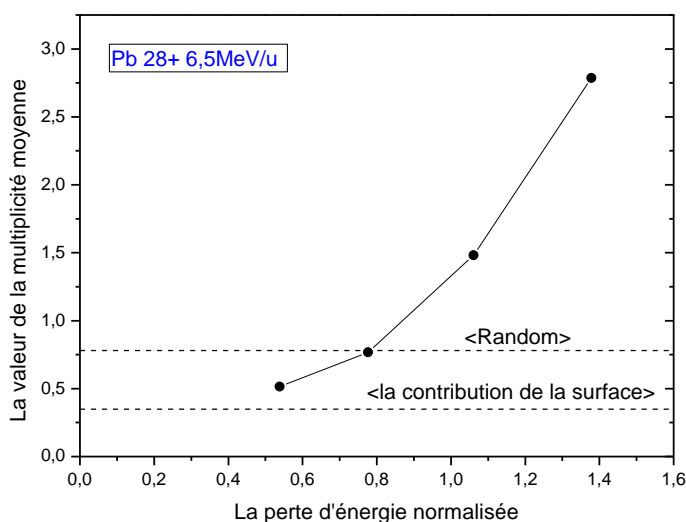
**Tableau 3-10 : la sélection en perte d'énergie des ions transmis avec leur état de charge à la sortie du cristal, leur état de charge à l'entrée du cristal, et la multiplicité correspondante sans la contribution de la couche amorphe (SCCA) ( $Pb^{56+}$  à 29 MeV/u).**

Dans le cas de  $Pb^{56+}$  la multiplicité a augmenté d'un facteur 4,5. Ce facteur peut augmenter encore si on sélectionne les ions qui ont une perte d'énergie égale à 2,5 fois la perte d'énergie random, mais comme nous l'avons déjà écrit, à cause du problème de la soustraction du bruit de fond dans SPEG, nous n'avons pas montré cette sélection.

Dans le cas des ions  $Pb^{28+}$  la multiplicité a augmenté d'un facteur 7,5. Nous avons vu à haute énergie que la dépendance de la contribution du dépôt d'énergie sous la couche amorphe sur la multiplicité avec la charge est en  $Q^2$ . Donc, nous avons supposé qu'à basse énergie, on a la même dépendance avec la charge, ce qui nous permet d'enlever la contribution de la charge en divisant le facteur d'augmentation 7,5 par le rapport des carrés de la charge moyenne présenté dans le tableau 13, qui est égal à 1,3. Donc, on trouve qu'à basse énergie la multiplicité a augmenté d'un facteur 5,7 si on enlève la contribution de l'augmentation de la charge (en réalité, ce facteur est plus grand que 5,7 puisque nous avons utilisé une charge moyenne surestimée).

Donc le facteur d'augmentation de la multiplicité est plus grand à basse énergie qu'à haute énergie. Nous avons pensé que l'effet responsable de cette différence est lié à un effet de la vitesse. En effet, les ions mal canalisés rencontrent des densités électroniques grandes (à

cause des électrons de cœur qui sont localisés près des noyaux de germanium), donc la probabilité de faire des collisions proches avec les électrons du milieu augmente, et le nombre des électrons rapides (les électrons  $\delta$ ) résultant de ces collisions augmente. Donc, il y a une partie non négligeable de la perte d'énergie des ions mal canalisés qui est transférée aux électrons  $\delta$ , qui à leur tour vont déposer de l'énergie très loin de la trajectoire de l'ion puisqu'ils sont rapides. Donc, à cause de ces électrons, l'énergie déposée par les ions ne reste pas concentrée autour de leur trajectoire. Autrement dit, les électrons  $\delta$  diminuent la densité du dépôt de l'énergie dans le milieu puisqu'ils augmentent le volume du dépôt de l'énergie. Et cet effet est plus grand à haute énergie qu'à basse énergie puisque les électrons  $\delta$  sont plus rapides à haute énergie.



**Figure 3-53: la variation de la valeur moyenne de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie normalisée ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5 MeV/u).**

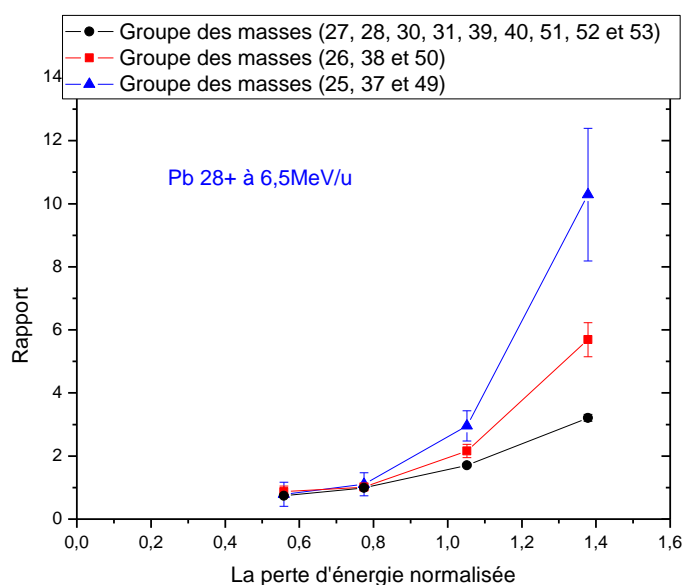
La Figure 3-53 montre la valeur moyenne de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie. Nous avons obtenu cette courbe, comme dans le cas de  $\text{Pb}^{56+}$ , en prenant la moyenne de la multiplicité et la moyenne pondérée des centroïdes des sélections en perte d'énergie pour chaque état de charge dans la Figure 3-52. L'augmentation de la multiplicité avec la perte d'énergie n'est pas linéaire contrairement aux deux autres cas à haute énergie. On constate aussi que l'augmentation par rapport au random pour les ions de fortes pertes d'énergie est très grande. Cela montre que l'échange de charge est plus rapide pour les ions de forte perte d'énergie que pour les ions dans le cas random à basse énergie, dans la zone contribuant à l'émission ionique.

En résumé sur la multiplicité, dans ce cas des ions incidents  $\text{Pb}^{28+}$  à basse énergie, le dépôt d'énergie sous la couche amorphe est le responsable de la variation observée en fonction de la perte d'énergie, mais il ne dépend pas seulement de la densité électronique rencontrée à l'entrée du cristal (comme pour les deux autres systèmes), il dépend aussi de l'état de charge des ions puisque l'échange de charge est très rapide à basse énergie. Aussi, il y a l'effet de la vitesse, qui réduit la multiplicité des ions bien canalisés en réduisant leur taux de perte d'énergie d'une part, et, d'autre part, augmente la multiplicité des ions mal canalisés en augmentant la densité du dépôt d'énergie autour des trajectoires des ions. Donc lorsque la

vitesse diminue, l'effet différentiel sur la multiplicité entre les ions bien canalisés et les ions de forte perte d'énergie augmente.

## (ii) Rendements

Pour les rendements, leur augmentation avec la perte d'énergie, comme la multiplicité, n'est pas linéaire. Pour les ions bien canalisés, on a une réduction des rendements par rapport au random plus grande qu'à haute énergie. Pour les ions de forte perte d'énergie l'augmentation des rendements par rapport au random est plus grande qu'à haute énergie. Cette augmentation varie d'une espèce à une autre. Pour les espèces qui sont sensibles au dépôt d'énergie sous la couche amorphe comme le groupe des masses 25, 37 et 49 et comme le groupe des masses 26, 38 et 50, le facteur d'augmentation des rendements est respectivement 10 et 6 (Figure 3-54). De même, le rendement de la partie issue de la fragmentation pour les pics de masses 39, 41 et 43 (Figure 3-55) a augmenté d'un facteur jusqu'à 4. Comme on a vu dans le cas des ions  $Pb^{56+}$ , la profondeur effective pour l'émission de ces espèces et pour la fragmentation est grande. On constate cependant que les rendements des espèces 39, 41 et 43 issues de la fragmentation ne sont pas spectaculairement différents de ceux des mêmes espèces n'ayant pas fragmenté, contrairement au cas des ions  $Pb^{56+}$ . Les rendements des masses 147, 73 et de l'hydrogène (Figure 3-56) ont une augmentation avec la perte d'énergie relativement faible par rapport aux rendements des autres espèces, ce qui n'est pas étonnant puisque ces rendements n'ont pas beaucoup augmenté avec l'augmentation de la charge à haute énergie (voir Figure 3-50).



**Figure 3-54:** rendements des groupes de masses normalisés par rapport aux groupes correspondant dans le cas random en fonction de la perte d'énergie normalisée ( $Pb^{28+}$  à 6,5 MeV/u).

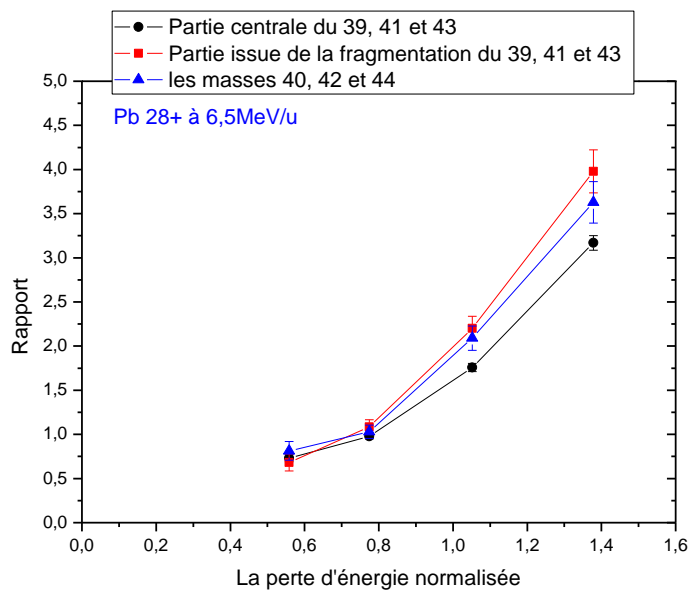


Figure 3-55: rendements, normalisés par rapport à leurs correspondant dans le cas random, en fonction de la perte d'énergie normalisée : la courbe noire correspond à la partie centrale des pics de masses 39, 41 et 43, la courbe rouge correspond à la partie issue de la fragmentation pour les mêmes pics de masses, la courbe bleue correspond aux pics des masses 40, 42 et 44 ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).

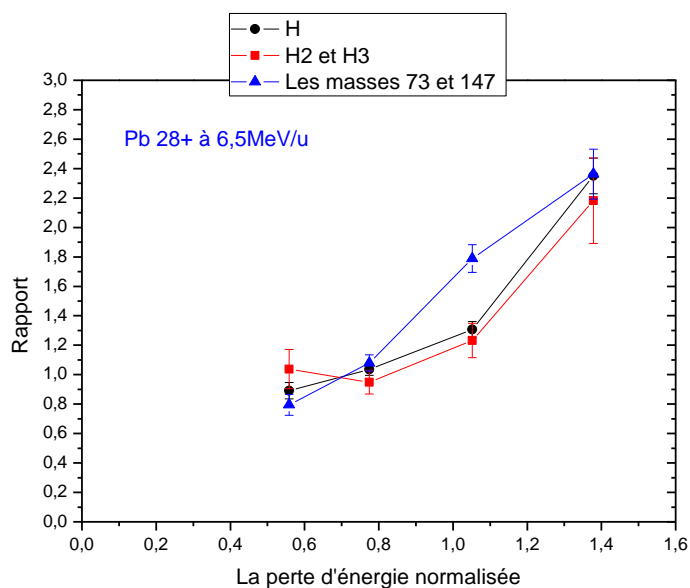


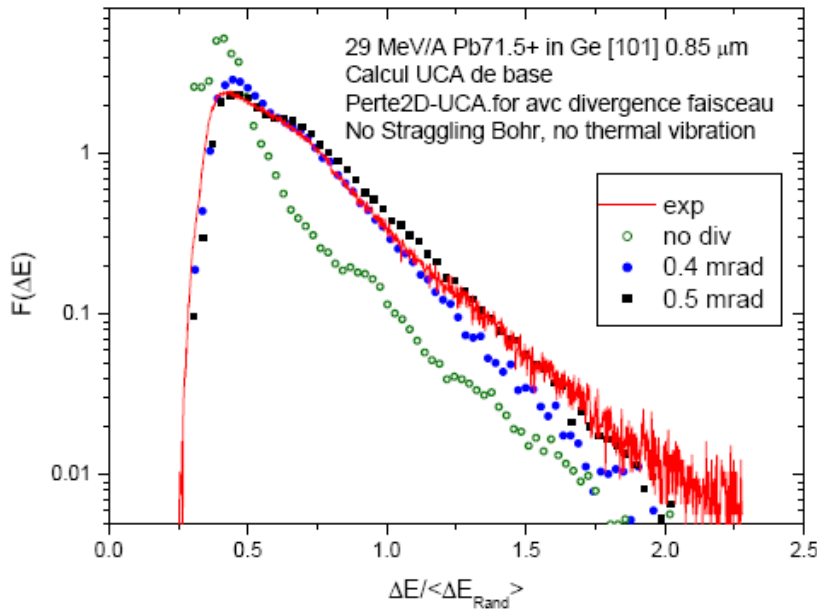
Figure 3-56: rendements, normalisés par rapport à leurs correspondant dans le cas random, en fonction de la perte d'énergie totale normalisée : la courbe noire correspond au rendement des ions  $\text{H}^+$ , la courbe rouge correspond à la somme des rendements des ions  $\text{H}_2^+$  et  $\text{H}_3^+$ , la courbe bleue correspond à la somme des rendements de la masse 73 et de la masse 147 ( $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5MeV/u).



#### *d. Correspondance entre perte d'énergie intégrée et perte d'énergie à l'entrée du cristal*

Comme nous l'avons déjà évoqué dans le premier chapitre (Chapitre 1 :C -II. 2)), la connaissance de la perte d'énergie à l'entrée du cristal est nécessaire pour étudier la pulvérisation électronique. Nous avons déjà présenté des simulations pour la perte d'énergie à l'entrée du cristal faites par Alain L'Hoir. Nous les avons présentées pour avoir une idée sur la perte d'énergie à l'entrée du cristal en fonction du paramètre d'impact aux rangées d'atomes.

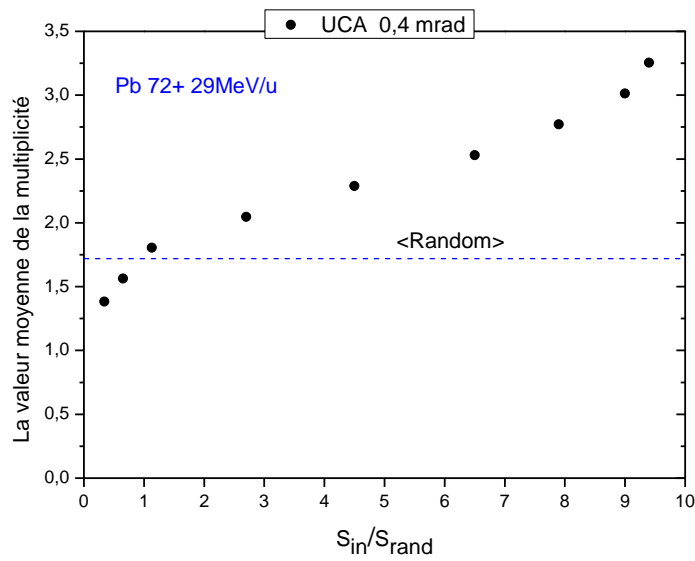
Dans cette partie nous allons les reprendre pour étudier la variation de la multiplicité en fonction de la perte d'énergie à l'entrée du cristal.



**Figure 3-57:** comparaison du spectre de perte d'énergie expérimental pour 29MeV/u  $Pb^{72+}$  avec des spectres calculés dans le cadre de UCA ( $Pb^{72+}$  à 29MeV/u).

La Figure 3-57 montre des spectres de perte d'énergie des ions  $Pb^{72+}$  à 29MeV/u à travers le cristal de germanium dans le cas d'alignement axial. La courbe rouge correspond au spectre expérimental (voir partie B-II-1). Les autres courbes correspondent au spectre calculé par les simulations avec et sans divergence angulaire du faisceau. On constate que la simulation reproduit le spectre expérimental de la perte d'énergie lorsqu'on prend en compte la divergence angulaire du faisceau.

La Figure 3-58 montre la variation de la multiplicité en fonction du taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal (unité perte d'énergie random). Le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal varie de 0,4 fois le taux de perte d'énergie moyen random pour les ions bien canalisés jusqu'à plus que 9 fois le taux de perte d'énergie moyen random pour les ions de forte perte d'énergie. La variation de la multiplicité avec le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal n'est plus linéaire contrairement à sa variation avec la perte d'énergie intégrée dans le cristal (Figure 3-38). Et cette variation est moins rapide.



**Figure 3-58: Multiplicité moyenne en fonction de la perte d'énergie à l'entrée du cristal ( $Pb^{72+}$  à 29MeV/u)**

Le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal a augmenté de plus que d'un facteur  $\sim 20$  (facteur 6 sur la perte d'énergie intégrée) lorsqu'on passe des ions bien canalisés aux ions de forte perte d'énergie. Pour cette variation, la multiplicité a augmenté, si on enlève la contribution de la surface, d'un facteur  $\sim 6$ .

Le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal a augmenté d'un facteur de 1,65 lorsqu'on a augmenté la charge incidente à haute énergie de 56+ à 72+. Pour cette variation, la multiplicité a augmenté d'un facteur  $\sim 1,6$ .

Si le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal varie d'un facteur de 1,65 par rapport au taux de perte d'énergie des ions bien canalisés, on trouve que la multiplicité varie aussi d'un facteur  $\sim 1,6$ . Et on trouve le même facteur si on fait la variation par rapport aux ions de forte perte d'énergie.

Donc en variant le taux de perte d'énergie sous la couche amorphe de deux manières, une fois en variant la charge et une autre fois en variant la densité électronique rencontrée, on trouve le même effet sur la variation de la multiplicité des ions secondaires.

## Conclusion

En conclusion, nous avons réalisé la première expérience de mesure d'émission ionique sous impact d'ions lourds rapides en surface d'un monocristal, en condition d'alignement axial. Ceci a été rendu possible en condition de transmission des projectiles à travers une cible mince de germanium, en mesurant leur perte d'énergie et leur état de charge grâce au spectromètre SPEG, et en mesurant par temps de vol les espèces ioniques émises au moyen du spectromètre de masse multianode LAG. Cette expérience a permis de mettre en évidence un effet différentiel sur les multiplicités totales, ainsi que sur les rendements des diverses espèces émises, en fonction du dépôt d'énergie à l'entrée du cristal. Toutes les mesures en condition d'alignement ont été comparées aux mesures faites pour une orientation quelconque.

Nous avons trouvé que la pulvérisation électronique est essentiellement formée des ions qui viennent de la couche d'impuretés en surface. Le rendement d'émissions des ions de germanium a été trouvé très faible, même pour les ions qui ont un taux de perte d'énergie plus grande que le seuil d'endommagement du germanium.

Dans le cas d'une orientation quelconque, nous avons regardé la dépendance de la multiplicité totale et des rendements avec la charge incidente en comparant les projectiles incidents  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$  à haute énergie. Et pour trouver la dépendance avec la vitesse nous avons comparé ces mesures avec celles obtenues pour les ions  $\text{Pb}^{28+}$  à 6,5 MeV/u et un faisceau virtuel  $\text{Pb}^{33+}$  à 29 MeV/u.

Nous avons trouvé, pour la multiplicité des ions secondaires, une dépendance avec la charge  $q$  en  $q^n$  avec  $n \sim 3$ . Par contre, les rendements des différentes masses n'ont pas les mêmes dépendances avec la charge. Nous avons trouvé des dépendances très fortes, par exemple pour les masses 25, 37, et 49 ( $n \sim 7$ ), et des dépendances moyennes, par exemple pour la famille de l'hydrogène (on a pour l'ion  $\text{H}^+$  une dépendance en  $q^n$  avec  $n = 4,7$ , pour  $\text{H}_2$   $n = 5,15$  et pour  $\text{H}_3$   $n = 6,15$ ), et des dépendances faibles, par exemple pour les masses 73 et 147 ( $n \sim 2$ ). La probabilité de fragmentation des molécules émises n'a pas changé significativement avec la charge.

Avec la vitesse, nous avons trouvé, pour la multiplicité des ions secondaires, une dépendance en puissance de  $(1/v)^n$  et  $n \sim 2$ . La dépendance avec la vitesse est plus faible que la dépendance en charge, ce qui est vrai aussi pour les rendements. Par contre l'effet de la vitesse agit très fortement sur la probabilité de fragmentation : elle est plus grande à basse énergie qu'à haute énergie.

En condition d'alignement axial, nous avons trouvé que l'émission ionique dépend de l'énergie transverse des ions canalisés, autrement dit, l'émission ionique dépend du taux de perte d'énergie des ions sous la couche amorphe.

Nous avons vu des effets différentiels sur la multiplicité. En effet, nous avons trouvé que la valeur moyenne de la multiplicité augmente faiblement et d'une façon non linéaire avec le taux de perte d'énergie à l'entrée du cristal. Plus le taux de perte d'énergie des ions à l'entrée du cristal augmente, plus on a des événements avec des grandes multiplicités. L'augmentation de la probabilité de ces événements est due à la fois à l'augmentation du nombre d'ions secondaires émis et à l'augmentation de la probabilité de fragmentation des molécules émises.

Pour les rendements des différentes masses émises, nous avons trouvé que l'effet différentiel avec la perte d'énergie intégrée dépend du type d'ion émis. L'effet différentiel sur l'émission de l'hydrogène était le plus faible. Cela montre que la profondeur effective pour l'émission de l'hydrogène n'est que légèrement plus grande que l'épaisseur de la couche amorphe. Nous avons trouvé aussi que l'effet différentiel pour les rendements des différentes masses choisies n'est pas dû seulement à l'augmentation de la probabilité de fragmentation.

Nous avons réussi à isoler la contribution à l'émission ionique du dépôt de l'énergie dans la couche amorphe de la contribution à l'émission ionique du dépôt de l'énergie dans le cristal. En particulier, nous avons trouvé que, pour les ions bien canalisés, l'émission ionique en surface provient essentiellement du dépôt d'énergie dans la couche amorphe.

En comparant pour une sélection donnée en énergie transverse des ions incidents  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$  à haute énergie, nous avons trouvé que la dépendance avec la charge de la contribution du dépôt d'énergie sous la couche amorphe sur la multiplicité est en  $q^2$ . Cela montre que la contribution du volume sous la couche amorphe à la multiplicité ne dépend que de la perte d'énergie puisqu'elle varie en  $q^2$ . Pour la contribution du dépôt d'énergie dans la couche amorphe à la multiplicité, nous avons trouvé une dépendance avec la charge à la puissance 3,8. Donc l'effet du dépôt de l'énergie à l'émission ionique dans la couche amorphe est très fort. Par contre, l'émission des molécules dans un état excité a une dépendance faible avec le dépôt d'énergie dans la couche amorphe, puisque la probabilité de fragmentation dans le cas des ions bien canalisés est très faible. Il faut aussi noter que l'effet différentiel sur la probabilité de fragmentation n'a pas changé significativement entre les ions  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$  incidents.

Pour les rendements, en comparant pour une sélection donnée en énergie transverse des ions incidents entre les ions  $\text{Pb}^{72+}$  et  $\text{Pb}^{56+}$  incidents à 29 MeV/u, nous avons trouvé la même dépendance en charge que nous avons trouvée dans le cas d'une orientation quelconque, quelle que soit l'espèce émise. Cela montre que l'émission ionique de ces espèces vient de l'effet du dépôt de l'énergie sous la couche amorphe pour une profondeur inférieure à la distance moyenne pour que la charge augmente dans le cas des ions 56+ incidents.

A basse énergie, nous avons trouvé que l'effet différentiel avec la perte d'énergie sur les rendements, la multiplicité et la probabilité de fragmentation, est très accentué. Cet effet n'est pas dû seulement à l'augmentation de la densité électronique rencontrée par les ions incidents, comme dans le cas des deux autres systèmes, mais aussi à l'augmentation de la charge dans la zone qui contribue à l'émission ionique puisque les sections efficaces pour l'échange de charge à basse énergie sont très grandes. En enlevant la contribution de la charge à la multiplicité, en supposant une dépendance en  $q^2$  comme à haute énergie, nous avons trouvé que l'effet différentiel restait toujours accentué par rapport aux mesures à haute énergie. Donc nous avons conclu qu'il y a un autre effet que celui de l'augmentation de la charge, et qui est un effet de vitesse : à basse énergie, le dépôt d'énergie est plus concentré autour de trajectoire des ions qu'à haute énergie. Cela montre l'effet de la densité du dépôt de l'énergie à l'émission ionique. Par ailleurs, l'effet de la densité du dépôt d'énergie était déjà observé dans le cas d'une orientation quelconque : en effet, le taux de perte d'énergie des ions  $\text{Pb}^{28+}$  à l'entrée du cristal est inférieur du taux de perte d'énergie des ions  $\text{Pb}^{56+}$  à haute énergie, alors qu'il n'y a pas une différence significative au niveau des rendements et de la multiplicité.

Enfin nous avons pu montrer que la variation du taux de perte d'énergie, en variant la charge ou la densité électronique rencontrée, a le même effet sur la multiplicité des ions secondaires.

Dans ce travail nous avons pu montrer l'intérêt de la canalisation pour les expériences de pulvérisation électronique.

Maintenant, il resterait à faire la même expérience sous ultra-vide pour avoir une surface du cristal la plus propre possible.

Il faudrait utiliser un système de détection des ions secondaires qui a une plus grande acceptance angulaire, ce qui permettrait de mettre en évidence (ou pas) l'explosion coulombienne d'une rangée d'atomes.

Il faudrait aussi utiliser un faisceau à basse énergie (quelques MeV/u), proche du maximum de  $dE/dx$ , mais avec un état de charge grand pour augmenter à la fois la densité d'ionisation et la densité du dépôt d'énergie.

Il faudrait également étudier la pulvérisation ionique en variant l'angle entre la normale à la surface du cristal et la direction du faisceau, avec un pas inférieur à l'angle critique de la canalisation. Cela nous permettrait de mesurer la profondeur effective à l'émission ionique. En effet, nous avons mis en évidence l'effet d'un faible désalignement du cristal sur l'émission ionique.

Enfin, il est très important de faire des simulations de type dynamique moléculaire pour essayer d'expliquer les différents résultats expérimentaux, et pour suivre en temps le comportement du milieu pendant une durée de  $10^{-16}$  sec à  $10^{-13}$  sec. Pendant cette période la réponse du système électronique se fait à la perturbation apportée par l'ion incident autour de sa trajectoire, et jusqu'à maintenant seules les simulations sont capables de suivre l'évolution du système à cette échelle de temps.

## Bibliographie

- [1] S. Andriamonje et al., *Phys. Rev. A* **54**, 1404 (1996).
- [2] G. d. M. Azevedo et al., *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1482 (2001).
- [3] F. Barrué et al., *Phys. Rev. A* **70**, 32902 (2004).
- [4] I. Bianchi et al., *Nucl. Instr. And Meth. A* **276**, 509 (1989).
- [5] J.P. Biersack, *Z. Phys.* **211**, 495 (1968).
- [6] S. Bouffard et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **141**, 372 (1998).
- [7] S. Bouneau et al., *Phys. Rev. B* **71**, 174110 (2005).
- [8] S. Bouneau et al., *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 57 (2003).
- [9] B. Canut et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **146**, 296 (1998).
- [10] M. Caron et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **179**, 167 (2001).
- [11] C. Cohen, D. Dauvergne, *Nucl. Instr. And Meth. B* **225**, 40 (2004).
- [12] D. Dauvergne (1993) Processus de capture électronique par des ions lourds très épluchés *canalisés dans des cristaux minces à des énergies supérieures à 20 MeV/u*, thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1. **78**
- [13] D. Dauvergne et al., *Phys. Rev. A* **59**, 2813 (1999).
- [14] S. Della-Negra et al., *Phys. Rev. Lett* **58**, 17 (1987).
- [15] A. Dunlop et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **90**, 330 (1994).
- [16] A. Dunlop et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **146**, 302 (1998).
- [17] P. Van. Duppen, *Ecole Juliot-Curie*, (1997).
- [18] O.B. Firsov, *Sov. Phys. JETP* **9**, 1076 (1959).
- [19] R.L. Fleischer et al., *Phys. Rev* **156**, 353 (1967).
- [20] P.L. Grande, G. Schiwietz, *Nucl. Instr. And Meth. B* **195**, 55 (2002).
- [21] A. l'Hoir et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **48**, 145 (1990).
- [22] A. l'Hoir et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **245**, 1 (2006).
- [23] H. Huber et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **146**, 309 (1998).
- [24] N. Imanishi, S. Ninomiya, *Jour. Nucl. And Radio. Scie.* **5**, R9 (2004).
- [25] R.R. Johnson et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* **198**, 103 (1982).
- [26] R.E. Johnson et al., *Rev. Mod. Phys.* **68**, 305 (1996).
- [27] N. Khalfaoui et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **209**, 304 (2003).
- [28] F.F. Komarov et al., *Vacuum* **70**, 75 (2003).
- [29] H. Kudo et al., *Phys. Rev. B* **38**, 44 (1988).
- [30] A. Léon et al., *Atomic data and nuclear data tables* **69**, 217 (1998).
- [32] D. Lesueur, A. Dunlop, *Radiat. Eff. Defects Solids* **126**, 163 (1993).
- [31] C. Leroy (1996), Les traces latentes à la surface du mica : effet de la vitesse et de la charge du projectile, thèse de doctorat, Université de Caen / Basse-Normandie.
- [46] S. Schlutig (2001). Contribution à l'étude de la pulvérisation et de l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides, thèse de doctorat, Université de Caen / Basse-Normandie. **64**
- [33] J. Lindhard et al., *Mat. Phys. Medd.* **3**, 10 (1963).
- [34] J. Lindhard et al., *Mat. Phys. Medd.* **33**, (1963).

- [35] J. Liu et al., *Phys. Rev. B* **64**, 184115 (2001).
- [36] N. Matsunami et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **209**, 288 (2003).
- [37] A. Meftah et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **107**, 242 (1996).
- [38] A. Meftah et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **237**, 563 (2005).
- [39] H. D. Mieskes et al., *Phys. Rev. B* **67**, 155404 (2003).
- [40] M. Most et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **168**, 203 (2000).
- [41] R. Neugebauer et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **209**, 62 (2003).
- [42] J. A. M. Pereira, E. F. Da Silveira, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5904 (2000).
- [43] Rivillon et al., *Applied. Phys. Lett.* **87**, 253101 (2005).
- [44] T. Schenkel et al., *Phys. Rev. Lett* **81**, 2590 (1998).
- [45] G. Schiwietz, P.L. Grande, *Nucl. Instr. And Meth. B* **153**, 1 (1999).
- [47] K. Schwartz et al., *Phys. Rev. B* **58**, 11232 (1998).
- [48] R. Söhr, *Ion Track and Microtechnology* , (1990).
- [49] P. Stampfli et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **107**, 138 (1996).
- [50] G. Szenes et al., *Phys. Rev. B* **65**, 45206 (2002).
- [51] M. Tarisien (2003). Dynamique de la fragmentation de molécules simples induite par impact d'ion multichargé, thèse de doctorat, Université de Caen / Basse-Normandie. **96-101**
- [52] E. Testa (2005). Echanges de charge et perte d'énergie d'ions lourds ralentis, canalisés dans des cristaux de silicium, thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon1. **11-56**
- [53] M. Toulemonde et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **166-167**, 903 (2000).
- [54] M. Toulemonde et al., *Phys. Rev. Lett* **88**, 331 (2001).
- [55] M. Toulemonde et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **212**, 346 (2003).
- [56] C. Trautmann et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **191**, 144 (2002).
- [57] M.P.R. Waligorski et al., *Nucl. Track. Radiat.Meas.* **11**, 309 (1986).
- [58] W. Wesch et al., *Nucl. Instr. And Meth. B* **225**, 111 (2004).